

AP20 Rec'd PCT/PTO 18 APR 2006

N-substituierte Pyrazolylcarboxanilide

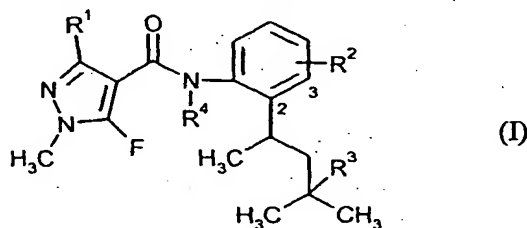
Die vorliegende Erfindung betrifft neue (N-substituierte) Pyrazolylcarboxanilide, mehrere Verfahren zu deren Herstellung und deren Verwendung zur Bekämpfung von unerwünschten Mikroorganismen.

5

Es ist bereits bekannt, dass zahlreiche Carboxanilide fungizide Eigenschaften besitzen (vgl. WO 93/11117, EP-A 0 545 099, EP-A 0 824 099, JP 63-48269, WO 02/059086 und JP 8-176112). Beispielsweise seien N-[2-(1,3-Dimethylbutyl)phenyl]-5-fluor-1-methyl-N-prop-2-in-1-yl-3-(trifluormethyl)-1H-pyrazol-4-carboxamid und N-Acetyl-N-[2-(1,3-dimethylbutyl)phenyl]-5-fluor-1-methyl-3-(trifluormethyl)-1H-pyrazol-4-carboxamid genannt (WO 02/059086). Die Wirksamkeit dieser Stoffe ist gut, lässt aber bei niedrigen Aufwandmengen in manchen Fällen zu wünschen übrig.

10

Es wurden nun neue N-substituierte Pyrazolylcarboxanilide der Formel (I)



15 gefunden, in welcher

R¹ für Methyl, Trifluormethyl oder Difluormethyl steht,

R² für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Methyl oder Trifluormethyl steht,

a) R³ für Wasserstoff steht,

R⁴ für C₁-C₈-Alkyl, C₁-C₆-Alkylsulfinyl, C₁-C₆-Alkylsulfonyl, C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₃-C₈-Cycloalkyl; C₁-C₆-Halogenalkyl, C₁-C₄-Halogenalkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylsulfinyl, C₁-C₄-Halogenalkylsulfonyl, Halogen-C₁-C₄-alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₃-C₈-Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; Formyl, Formyl-C₁-C₃-alkyl, (C₁-C₃-Alkyl)carbonyl-C₁-C₃-alkyl, (C₁-C₃-Alkoxy)carbonyl-C₁-C₃-alkyl; Halogen-(C₁-C₃-alkyl)carbonyl-C₁-C₃-alkyl, Halogen-(C₁-C₃-alkoxy)carbonyl-C₁-C₃-alkyl mit jeweils 1 bis 13 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; (C₃-C₈-Cycloalkyl)carbonyl; (C₃-C₈-Halogencycloalkyl)carbonyl mit 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; oder -C(=O)C(=O)R⁵, -CONR⁶R⁷ oder -CH₂NR⁸R⁹ steht,

25

b) R³ für Halogen, C₁-C₈-Alkyl oder C₁-C₈-Halogenalkyl steht,

R⁴ für C₁-C₈-Alkyl, C₁-C₆-Alkylsulfinyl, C₁-C₆-Alkylsulfonyl, C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₃-C₈-Cycloalkyl; C₁-C₆-Halogenalkyl, C₁-C₄-Halogenalkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylsulfinyl, C₁-C₄-Halogenalkylsulfonyl, Halogen-C₁-C₄-alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₃-C₈-

30

- Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; Formyl, Formyl-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl, (C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-Alkyl)carbonyl-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl, (C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-Alkoxy)carbonyl-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl; Halogen-(C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl)carbonyl-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl, Halogen-(C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkoxy)carbonyl-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl mit jeweils 1 bis 13 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen;
- 5 (C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkyl)carbonyl, (C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkoxy)carbonyl, (C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl)carbonyl, (C<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>-Cycloalkyl)carbonyl; (C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenalkyl)carbonyl, (C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenalkoxy)carbonyl, (Halogen-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl)carbonyl, (C<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>-Halogencycloalkyl)carbonyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; oder -C(=O)C(=O)R<sup>5</sup>, -CONR<sup>6</sup>R<sup>7</sup> oder -CH<sub>2</sub>NR<sup>8</sup>R<sup>9</sup> steht,
- 10 R<sup>5</sup> für Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>-Cycloalkyl; C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenalkoxy, Halogen-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>-Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht,
- R<sup>6</sup> und R<sup>7</sup> unabhängig voneinander jeweils für Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>-Cycloalkyl; C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Halogenalkyl, Halogen-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>-Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen stehen,
- 15 R<sup>6</sup> und R<sup>7</sup> außerdem gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, einen gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl substituierten gesättigten Heterocyclus mit 5 bis 8 Ringatomen bilden, wobei der Heterocyclus 1 oder 2 weitere, nicht benachbarte Heteroatome aus der Reihe Sauerstoff, Schwefel oder NR<sup>10</sup> enthalten kann,
- 20 R<sup>8</sup> und R<sup>9</sup> unabhängig voneinander für Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>-Cycloalkyl; C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Halogenalkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>-Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen stehen,
- R<sup>8</sup> und R<sup>9</sup> außerdem gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, einen gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl substituierten gesättigten Heterocyclus mit 5 bis 8 Ringatomen bilden, wobei der Heterocyclus 1 oder 2 weitere, nicht benachbarte Heteroatome aus der Reihe Sauerstoff, Schwefel oder NR<sup>10</sup> enthalten kann,
- 25 R<sup>10</sup> für Wasserstoff oder C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl steht.

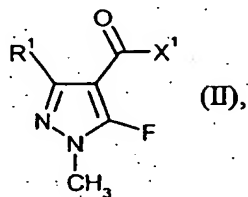
30

Die erfindungsgemäßen Verbindungen können gegebenenfalls als Mischungen verschiedener möglicher isomerer Formen, insbesondere von Stereoisomeren, wie z. B. E- und Z-, threo- und erythro-, sowie optischen Isomeren, gegebenenfalls aber auch von Tautomeren vorliegen. Es werden sowohl die E- als auch die Z-Isomeren, wie auch die threo- und erythro-, sowie die optischen Isomeren, beliebige Mischungen dieser Isomeren, sowie die möglichen tautomeren Formen beansprucht.

35

Weiterhin wurde gefunden, dass man N-substituierte Pyrazolylcarboxanilide der Formel (I) erhält, indem man

a) Carbonsäure-Derivate der Formel (II)

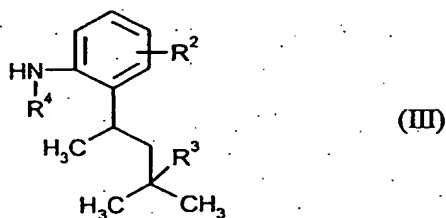


in welcher

R¹ die oben angegebenen Bedeutungen hat und

X¹ für Halogen oder Hydroxy steht,

mit einem Anilinderivat der Formel (III)

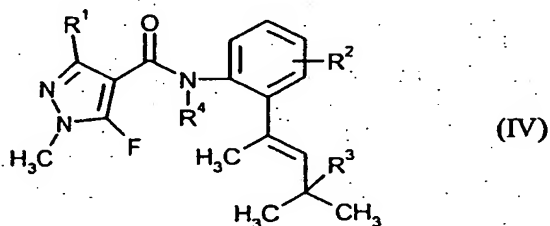


in welcher R², R³ und R⁴ die oben angegebenen Bedeutungen haben,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators, gegebenenfalls in Gegenwart eines Kondensationsmittels, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt,

oder

b) Pyrazolylcarboxanilide der Formel (IV)

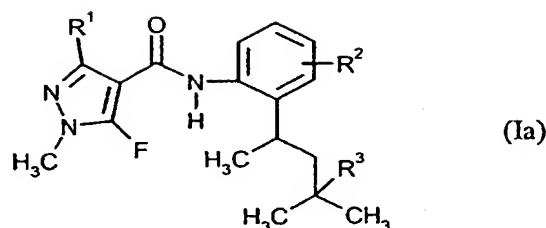


in welcher R¹, R², R³ und R⁴ die oben angegebenen Bedeutungen haben,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators hydriert,

oder

c) Pyrazolylcarboxanilide der Formel (Ia)



in welcher  $R^1$ ,  $R^2$  und  $R^3$  die oben angegebenen Bedeutungen haben  
mit Halogeniden der Formel (V)



- 5 in welcher  
 $R^4$  die oben angegebenen Bedeutungen hat und  
 $X^2$  für Chlor, Brom oder Iod steht,  
in Gegenwart einer Base und in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt.

- 10 Schließlich wurde gefunden, dass die neuen N-substituierten Pyrazolylcarboxanilide der Formel (I)  
sehr gute mikrobizide Eigenschaften besitzen und zur Bekämpfung unerwünschter Mikroorganismen  
sowohl im Pflanzenschutz als auch im Materialschutz verwendbar sind.

Die erfindungsgemäßen N-substituierten Pyrazolylcarboxanilide sind durch die Formel (I) allgemein  
15 definiert. Bevorzugte Restdefinitionen der vorstehenden und nachfolgend genannten Formeln sind  
im Folgenden angegeben. Diese Definitionen gelten für die Endprodukte der Formel (I) wie für alle  
Zwischenprodukte gleichermaßen.

- $R^1$  für steht bevorzugt für Methyl.  
20  $R^1$  für steht außerdem bevorzugt für Trifluormethyl.  
 $R^1$  für steht außerdem bevorzugt für Difluormethyl.
- $R^2$  steht bevorzugt für Wasserstoff.  
 $R^2$  steht außerdem bevorzugt für Fluor, wobei Fluor besonders bevorzugt in 4-, 5- oder 6-  
25 Position, ganz besonders bevorzugt in 4- oder 6-Position, insbesondere in 4-Position des  
Anilidrestes steht [vgl. oben Formel (I)].
- $R^2$  steht außerdem bevorzugt für Chlor, wobei Chlor besonders bevorzugt in 5-Position des  
Anilidrestes steht [vgl. oben Formel (I)].
- $R^2$  steht außerdem bevorzugt für Methyl, wobei Methyl besonders bevorzugt in 3-Position des  
30 Anilidrestes steht [vgl. oben Formel (I)].
- $R^2$  steht außerdem bevorzugt für Trifluormethyl, wobei Trifluormethyl besonders bevorzugt in  
4- oder 5-Position des Anilidrestes steht [vgl. oben Formel (I)].

Wenn R<sup>3</sup> für Wasserstoff steht, dann steht

- R<sup>4</sup> bevorzugt für C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfinyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-Alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl; C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkylsulfinyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkylsulfonyl, Halogen-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Halogen-cycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; Formyl, Formyl-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl, (C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-Alkyl)carbonyl-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl, (C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-Alkoxy)carbonyl-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl; Halogen-(C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl)carbonyl-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl, Halogen-(C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkoxy)carbonyl-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl mit jeweils 1 bis 13 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; (C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl)carbonyl; (C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Halogen-cycloalkyl)carbonyl mit 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; oder -C(=O)C(=O)R<sup>5</sup>, -CONR<sup>6</sup>R<sup>7</sup> oder -CH<sub>2</sub>NR<sup>8</sup>R<sup>9</sup>.

Wenn R<sup>3</sup> für Wasserstoff steht, dann steht

- R<sup>4</sup> steht besonders bevorzugt für Methyl, Ethyl, n- oder iso-Propyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butyl, Pentyl oder Hexyl, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, n- oder iso-Propylsulfinyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder iso-Propylsulfonyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butylsulfonyl, Methoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxymethyl, Ethoxyethyl, Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Trifluormethyl, Trichlormethyl, Trifluorethyl, Difluormethylthio, Difluorchlormethylthio, Trifluormethylthio, Trifluormethylsulfinyl, Trifluormethylsulfonyl, Trifluormethoxymethyl; Formyl, -CH<sub>2</sub>-CHO, -(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-CHO, -CH<sub>2</sub>-CO-CH<sub>3</sub>, -CH<sub>2</sub>-CO-CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>, -CH<sub>2</sub>-CO-CH(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>, -(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-CO-CH<sub>3</sub>, -(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-CO-CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>, -(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-CO-CH(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>, -CH<sub>2</sub>-CO<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>, -CH<sub>2</sub>-CO<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>, -CH<sub>2</sub>-CO<sub>2</sub>CH(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>, -(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-CO<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>, -(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-CO<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>, -(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-CO<sub>2</sub>CH(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>, -CH<sub>2</sub>-CO-CF<sub>3</sub>, -CH<sub>2</sub>-CO-CCl<sub>3</sub>, -CH<sub>2</sub>-CO-CH<sub>2</sub>CF<sub>3</sub>, -CH<sub>2</sub>-CO-CH<sub>2</sub>CCl<sub>3</sub>, -(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-CO-CH<sub>2</sub>CF<sub>3</sub>, -(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-CO-CH<sub>2</sub>CCl<sub>3</sub>, -CH<sub>2</sub>-CO<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CF<sub>3</sub>, -CH<sub>2</sub>-CO<sub>2</sub>CF<sub>2</sub>CF<sub>3</sub>, -CH<sub>2</sub>-CO<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CCl<sub>3</sub>, -CH<sub>2</sub>-CO<sub>2</sub>CCl<sub>2</sub>CCl<sub>3</sub>, -(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-CO<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CF<sub>3</sub>, -(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-CO<sub>2</sub>CF<sub>2</sub>CF<sub>3</sub>, -(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-CO<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CCl<sub>3</sub>, -(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-CO<sub>2</sub>CCl<sub>2</sub>CCl<sub>3</sub>; Cyclopropylcarbonyl, Cyclopentylcarbonyl, Cyclohexylcarbonyl, oder -C(=O)C(=O)R<sup>5</sup>, -CONR<sup>6</sup>R<sup>7</sup> oder -CH<sub>2</sub>NR<sup>8</sup>R<sup>9</sup>.

Wenn R<sup>3</sup> für Wasserstoff steht, dann steht

- R<sup>4</sup> steht ganz besonders bevorzugt für Methyl, Methoxymethyl, Formyl, -CH<sub>2</sub>-CHO, -(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-CHO, -CH<sub>2</sub>-CO-CH<sub>3</sub>, -CH<sub>2</sub>-CO-CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>, -CH<sub>2</sub>-CO-CH(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>, -C(=O)CHO, -C(=O)C(=O)CH<sub>3</sub>, -C(=O)C(=O)CH<sub>2</sub>OCH<sub>3</sub>, -C(=O)CO<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>, -C(=O)CO<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>.

Wenn

- R<sup>3</sup> bevorzugt für Fluor, Chlor, Brom, Iod, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 13 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht,  
besonders bevorzugt für Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n-, iso-Propyl, n-, iso-, sec-, tert-Butyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht,

ganz besonders bevorzugt für Methyl, Ethyl, Fluor, Chlor, Trifluormethyl steht,

dann steht

- R<sup>4</sup> bevorzugt für C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfinyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-Alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl; C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkylsulfinyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkylsulfonyl, Halogen-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Halogen-cycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; Formyl, Formyl-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl, (C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-Alkyl)carbonyl-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl, (C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-Alkoxy)carbonyl-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl; Halogen-(C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl)carbonyl-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl, Halogen-(C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkoxy)carbonyl-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl mit jeweils 1 bis 13 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen;
- (C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl)carbonyl, (C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkoxy)carbonyl, (C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-Alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl)carbonyl, (C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl)carbonyl; (C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl)carbonyl, (C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy)carbonyl, (Halogen-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl)carbonyl, (C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Halogen-cycloalkyl)carbonyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; oder -C(=O)C(=O)R<sup>5</sup>, -CONR<sup>6</sup>R<sup>7</sup> oder -CH<sub>2</sub>NR<sup>8</sup>R<sup>9</sup>, besonders bevorzugt für Methyl, Ethyl, n- oder iso-Propyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butyl, Pentyl oder Hexyl, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, n- oder iso-Propylsulfinyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder iso-Propylsulfonyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butylsulfonyl, Methoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxymethyl, Ethoxyethyl, Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Trifluormethyl, Trichlormethyl, Trifluorethyl, Difluormethylthio, Difluorchlormethylthio, Trifluormethylthio, Trifluormethylsulfinyl, Trifluormethylsulfonyl, Trifluormethoxymethyl; Formyl, -CH<sub>2</sub>-CHO, -CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>-CHO, -CH<sub>2</sub>-CO-CH<sub>3</sub>, -CH<sub>2</sub>-CO-CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>, -CH<sub>2</sub>-CO-CH(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>, -(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-CO-CH<sub>3</sub>, -(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-CO-CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>, -(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-CO-CH(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>, -CH<sub>2</sub>-CO<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>, -CH<sub>2</sub>-CO<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>, -CH<sub>2</sub>-CO<sub>2</sub>CH(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>, -(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-CO<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>, -(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-CO<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>, -(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-CO<sub>2</sub>CH(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>, -CH<sub>2</sub>-CO-CF<sub>3</sub>, -CH<sub>2</sub>-CO-CCl<sub>3</sub>, -CH<sub>2</sub>-CO-CH<sub>2</sub>CF<sub>3</sub>, -CH<sub>2</sub>-CO-CH<sub>2</sub>CCl<sub>3</sub>, -(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-CO-CH<sub>2</sub>CF<sub>3</sub>, -(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-CO-CH<sub>2</sub>CCl<sub>3</sub>, -CH<sub>2</sub>-CO<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CF<sub>3</sub>, -CH<sub>2</sub>-CO<sub>2</sub>CF<sub>2</sub>CF<sub>3</sub>, -CH<sub>2</sub>-CO<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CCl<sub>3</sub>, -CH<sub>2</sub>-CO<sub>2</sub>CCl<sub>2</sub>CCl<sub>3</sub>, -(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-CO<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CF<sub>3</sub>, -(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-CO<sub>2</sub>CF<sub>2</sub>CF<sub>3</sub>, -(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-CO<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CCl<sub>3</sub>, -(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-CO<sub>2</sub>CCl<sub>2</sub>CCl<sub>3</sub>;
- Methylcarbonyl, Ethylcarbonyl, n-Propylcarbonyl, iso-Propylcarbonyl, tert-Butylcarbonyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, tert-Butoxycarbonyl, Cyclopropylcarbonyl; Trifluormethylcarbonyl, Trifluormethoxycarbonyl, oder -C(=O)C(=O)R<sup>5</sup>, -CONR<sup>6</sup>R<sup>7</sup> oder -CH<sub>2</sub>NR<sup>8</sup>R<sup>9</sup>, ganz besonders bevorzugt für Methyl, Methoxymethyl, Formyl, -CH<sub>2</sub>-CHO, -(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-CHO, -CH<sub>2</sub>-CO-CH<sub>3</sub>, -CH<sub>2</sub>-CO-CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>, -CH<sub>2</sub>-CO-CH(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>, -C(=O)CHO, -C(=O)C(=O)CH<sub>3</sub>, -C(=O)C(=O)CH<sub>2</sub>OCH<sub>3</sub>, -C(=O)CO<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>, -C(=O)CO<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>.
- R<sup>5</sup> steht bevorzugt für Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-Alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl; C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy, Halogen-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Halogen-cycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen.

- R<sup>5</sup> steht besonders bevorzugt für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n- oder iso-Propyl, tert-Butyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder iso-Propoxy, tert-Butoxy, Cyclopropyl; Trifluormethyl, Trifluormethoxy.
- 5 R<sup>6</sup> und R<sup>7</sup> stehen unabhängig voneinander bevorzugt für Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-Alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl; C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl, Halogen-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenycycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/ oder Bromatomen.
- R<sup>6</sup> und R<sup>7</sup> bilden außerdem gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, bevorzugt einen gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Halogen oder C<sub>1</sub>-  
10 C<sub>4</sub>-Alkyl substituierten gesättigten Heterocyclus mit 5 bis 8 Ringatomen, wobei der Heterocyclus 1 oder 2 weitere, nicht benachbarte Heteroatome aus der Reihe Sauerstoff, Schwefel oder NR<sup>10</sup> enthalten kann.
- R<sup>6</sup> und R<sup>7</sup> stehen unabhängig voneinander besonders bevorzugt für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n- oder iso-Propyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butyl, Methoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxymethyl,  
15 Ethoxyethyl, Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl; Trifluormethyl, Trichlormethyl, Trifluorethyl, Trifluormethoxymethyl.
- R<sup>6</sup> und R<sup>7</sup> bilden außerdem gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, besonders bevorzugt einen gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Brom oder Methyl substituierten gesättigten Heterocyclus aus der Reihe Morpholin,  
20 Thiomorpholin oder Piperazin, wobei das Piperazin am zweiten Stickstoffatom durch R<sup>10</sup> substituiert sein kann.
- R<sup>8</sup> und R<sup>9</sup> stehen unabhängig voneinander bevorzugt für Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl; C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenycycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder  
25 Bromatomen.
- R<sup>8</sup> und R<sup>9</sup> bilden außerdem gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, bevorzugt einen gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Halogen oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl substituierten gesättigten Heterocyclus mit 5 bis 8 Ringatomen, wobei der Heterocyclus 1 oder 2 weitere, nicht benachbarte Heteroatome aus der Reihe Sauerstoff, Schwefel  
30 oder NR<sup>10</sup> enthalten kann.
- R<sup>8</sup> und R<sup>9</sup> stehen unabhängig voneinander besonders bevorzugt für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n- oder iso-Propyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butyl, Methoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxymethyl, Ethoxyethyl, Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl; Trifluormethyl, Trichlormethyl, Trifluorethyl, Trifluormethoxymethyl.
- 35 R<sup>8</sup> und R<sup>9</sup> bilden außerdem gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, besonders bevorzugt einen gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Fluor,

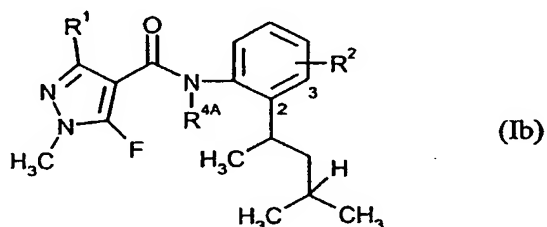
Chlor, Brom oder Methyl substituierten gesättigten Heterocyclus aus der Reihe Morpholin, Thiomorpholin oder Piperazin, wobei das Piperazin am zweiten Stickstoffatom durch  $R^{10}$  substituiert sein kann.

- 5  $R^{10}$  steht bevorzugt für Wasserstoff oder  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl.  
 $R^{10}$  steht besonders bevorzugt für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n- oder iso-Propyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butyl.

Hervorgehoben sind Verbindungen der Formel (I), in welcher  $R^4$  für Formyl steht.

- 10 Hervorgehoben sind außerdem Verbindungen der Formel (I), in welcher  $R^4$  für  $-C(=O)C(=O)R^5$  steht, wobei  $R^5$  die oben angegebenen Bedeutungen hat.

Hervorgehoben sind weiterhin N-substituierte Pyrazolylcarboxanilide der Formel (Ib)

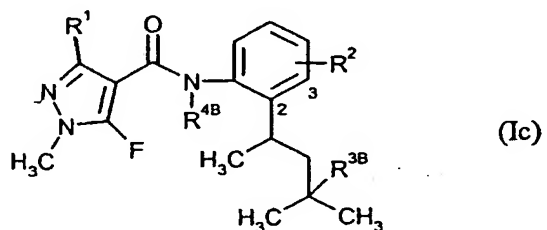


- 15 in welcher

$R^{4A}$  für  $C_1$ - $C_8$ -Alkyl,  $C_1$ - $C_6$ -Alkylsulfinyl,  $C_1$ - $C_6$ -Alkylsulfonyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy- $C_1$ - $C_4$ -alkyl,  $C_3$ - $C_8$ -Cycloalkyl;  $C_1$ - $C_6$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylthio,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylsulfinyl,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylsulfonyl, Halogen- $C_1$ - $C_4$ -alkoxy- $C_1$ - $C_4$ -alkyl,  $C_3$ - $C_8$ -Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; Formyl, Formyl- $C_1$ - $C_3$ -alkyl, ( $C_1$ - $C_3$ -Alkyl)carbonyl- $C_1$ - $C_3$ -alkyl, ( $C_1$ - $C_3$ -Alkoxy)carbonyl- $C_1$ - $C_3$ -alkyl; Halogen-( $C_1$ - $C_3$ -alkyl)carbonyl- $C_1$ - $C_3$ -alkyl, Halogen-( $C_1$ - $C_3$ -alkoxy)carbonyl- $C_1$ - $C_3$ -alkyl mit jeweils 1 bis 13 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; ( $C_3$ - $C_8$ -Cycloalkyl)carbonyl; ( $C_3$ - $C_8$ -Halogencycloalkyl)carbonyl mit 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; oder  $-C(=O)C(=O)R^5$ ,  $-CONR^6R^7$  oder  $-CH_2NR^8R^9$  steht,

- 25 und  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^5$ ,  $R^6$ ,  $R^7$ ,  $R^8$  und  $R^9$  die oben angegebenen Bedeutungen haben.

Hervorgehoben sind weiterhin N-substituierte Pyrazolylcarboxanilide der Formel (Ic)





in welcher

$R^{3B}$  für Halogen,  $C_1$ - $C_8$ -Alkyl oder  $C_1$ - $C_8$ -Halogenalkyl steht,

$R^{4B}$  für  $C_1$ - $C_8$ -Alkyl,  $C_1$ - $C_6$ -Alkylsulfinyl,  $C_1$ - $C_6$ -Alkylsulfonyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy- $C_1$ - $C_4$ -alkyl,  $C_3$ - $C_8$ -Cycloalkyl;  $C_1$ - $C_6$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylthio,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylsulfinyl,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylsulfonyl, Halogen- $C_1$ - $C_4$ -alkoxy- $C_1$ - $C_4$ -alkyl,  $C_3$ - $C_8$ -Halogenycycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; Formyl, Formyl- $C_1$ - $C_3$ -alkyl, ( $C_1$ - $C_3$ -Alkyl)carbonyl- $C_1$ - $C_3$ -alkyl, ( $C_1$ - $C_3$ -Alkoxy)carbonyl- $C_1$ - $C_3$ -alkyl; Halogen-( $C_1$ - $C_3$ -alkyl)carbonyl- $C_1$ - $C_3$ -alkyl, Halogen-( $C_1$ - $C_3$ -alkoxy)carbonyl- $C_1$ - $C_3$ -alkyl mit jeweils 1 bis 13 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen;

( $C_1$ - $C_8$ -Alkyl)carbonyl, ( $C_1$ - $C_8$ -Alkoxy)carbonyl, ( $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy- $C_1$ - $C_4$ -alkyl)carbonyl, ( $C_3$ - $C_8$ -Cycloalkyl)carbonyl; ( $C_1$ - $C_6$ -Halogenalkyl)carbonyl, ( $C_1$ - $C_6$ -Halogenalkoxy)carbonyl, (Halogen- $C_1$ - $C_4$ -alkoxy- $C_1$ - $C_4$ -alkyl)carbonyl, ( $C_3$ - $C_8$ -Halogenycycloalkyl)carbonyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; oder  $-C(=O)C(=O)R^5$ ,  $-CONR^6R^7$  oder  $-CH_2NR^8R^9$  steht,

und  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^5$ ,  $R^6$ ,  $R^7$ ,  $R^8$  und  $R^9$  die oben angegebenen Bedeutungen haben.

Gesättigte oder ungesättigte Kohlenwasserstoffreste wie Alkyl oder Alkenyl können, auch in Verbindung mit Heteroatomen, wie z.B. in Alkoxy, soweit möglich, jeweils geradkettig oder verzweigt sein.

Gegebenenfalls substituierte Reste können einfach oder mehrfach substituiert sein, wobei bei

Mehrfachsubstitutionen die Substituenten gleich oder verschieden sein können.

Durch Halogen substituierte Reste, wie z.B. Halogenalkyl, sind einfach oder mehrfach halogeniert.

Bei mehrfacher Halogenierung können die Halogenatome gleich oder verschieden sein. Halogen steht dabei für Fluor, Chlor, Brom und Iod, insbesondere für Fluor, Chlor und Brom.

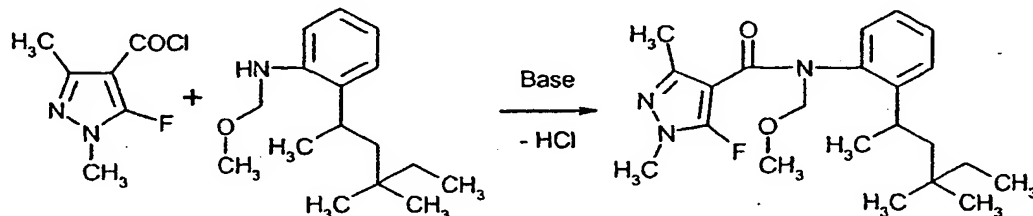
Die oben aufgeführten allgemeinen oder in Vorzugsbereichen aufgeführten Restdefinitionen bzw. Erläuterungen können jedoch auch untereinander, also zwischen den jeweiligen Bereichen und Vorzugsbereichen beliebig kombiniert werden. Sie gelten für die Endprodukte sowie für die Vor- und Zwischenprodukte entsprechend.

Die genannten Definitionen können untereinander in beliebiger Weise kombiniert werden. Außerdem können auch einzelne Definitionen entfallen.

Bevorzugt, besonders bevorzugt oder ganz besonders bevorzugt sind Verbindungen der Formel (I), welche jeweils die unter bevorzugt, besonders bevorzugt oder ganz besonders bevorzugt genannten

Substituenten tragen.

Verwendet man 5-Fluor-1,3-dimethyl-1H-pyrazol-4-carbonyl-chlorid und N-(Methoxymethyl)-2-(1,3,3-trimethylpentyl)anilin als Ausgangsstoffe, so kann das erfindungsgemäße Verfahren (a) durch das folgende Formelschema veranschaulicht werden:



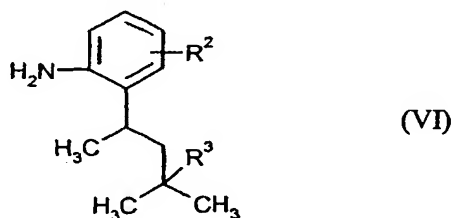
- 5 Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) als Ausgangsstoffe benötigten Carbonsäure-Derivate sind durch die Formel (II) allgemein definiert. In dieser Formel (II) hat R<sup>1</sup> bevorzugt diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt für R<sup>1</sup> angegeben wurden. X<sup>1</sup> steht bevorzugt für Chlor, Brom oder Hydroxy.

10

Die Carbonsäure-Derivate der Formel (II) sind bekannt und/oder lassen sich nach bekannten Verfahren herstellen (vgl. WO 93/11117, EP-A 0 545 099, EP-A 0 589 301 und EP-A 0 589 313).

- 15 Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) als Ausgangsstoffe weiterhin benötigten Aniline sind durch die Formel (III) allgemein definiert. In dieser Formel (III) haben R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup> und R<sup>4</sup> bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) für diese Reste als bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt angegeben wurden.

- 20 Die Anilin-Derivate der Formel (III) sind neu. Sie lassen sich herstellen, indem man,  
d) Alkylaniline der Formel (VI)



in welcher R<sup>2</sup> und R<sup>3</sup> die oben angegebenen Bedeutungen haben,  
mit Halogeniden der Formel (V)



25

in welcher

R<sup>4</sup> die oben angegebenen Bedeutungen hat und

X<sup>2</sup> für Chlor, Brom oder Iod steht,

gegebenenfalls in Gegenwart einer Base und in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt.

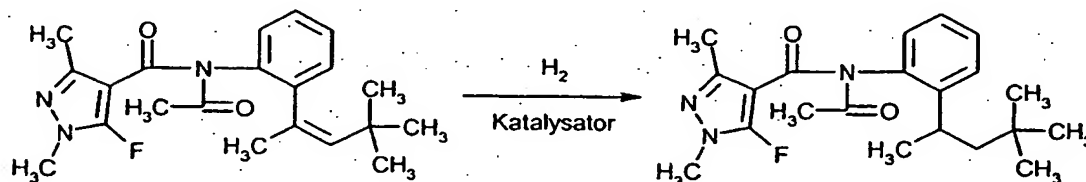
Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (d) als Ausgangsstoffe benötigten Alkylaniline sind durch die Formel (VI) allgemein definiert. In dieser Formel (VI) haben  $R^2$  und  $R^3$  bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt für diese Reste angegeben wurden.

Die Alkylaniline der Formel (VI) sind bekannt und/oder können nach bekannten Methoden erhalten werden (vgl. WO 03/010149).

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (d) als Ausgangsstoffe weiterhin benötigten Halogenide sind durch die Formel (V) allgemein definiert. In dieser Formel (V) hat  $R^4$  bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) für  $R^4$  als bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt angegeben wurden.

Halogenide der Formel (V) sind bekannt.

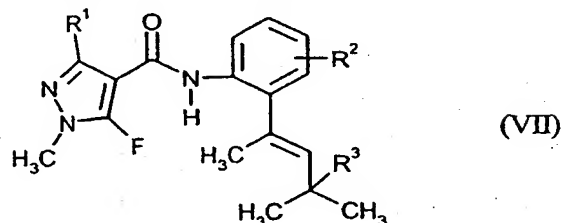
Verwendet man N-Acetyl-5-fluor-1,3-dimethyl-N-{2-[(1Z)-1,3,3-trimethylbut-1-en-1-yl]phenyl}-1H-pyrazol-4-carboxamid und Wasserstoff als Ausgangsstoffe sowie einen Katalysator, so kann der Verlauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) durch das folgende Formelschema veranschaulicht werden:



Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) als Ausgangsstoffe benötigten Pyrazolylcarboxanilide sind durch die Formel (IV) allgemein definiert. In dieser Formel (IV) haben  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  und  $R^4$  bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt für diese Reste angegeben wurden.

Die Verbindungen der Formel (IV) sind neu. Sie lassen sich herstellen, indem man

e) Pyrazolylcarboxanilide der Formel (VII)



in welcher  $R^1$ ,  $R^2$  und  $R^3$  die oben angegebenen Bedeutungen haben,  
mit Halogeniden der Formel (V)



in welcher

$R^4$  die oben angegebenen Bedeutungen hat und

$X^2$  für Chlor, Brom oder Iod steht,

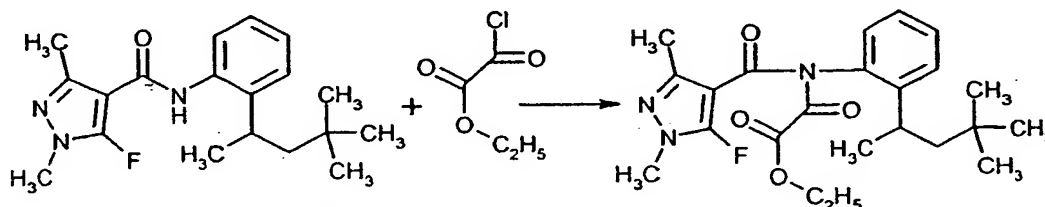
gegebenenfalls in Gegenwart einer Base und in Gegenwart eines Verdünnungsmittels  
umsetzt.

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (e) als Ausgangsstoffe benötigten Pyrazolylcarboxanilide sind durch die Formel (VII) allgemein definiert. In dieser Formel (VII) haben  $R^1$ ,  $R^2$  und  $R^3$  bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt für diese Reste angegeben wurden.

Die Pyrazolylcarboxanilide der Formel (VII) sind bekannt (vgl. WO 03/010149).

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (e) als Ausgangsstoffe weiterhin benötigten Halogenide der Formel (V) sind bereits im Zusammenhang mit dem erfindungsgemäßen Verfahren (d) beschrieben worden.

Verwendet man 5-Fluor-1,3-dimethyl-N-[2-(1,3,3-trimethylbutyl)phenyl]-1H-pyrazol-4-carboxamid und Ethyl-chlor(oxo)acetat als Ausgangsstoffe, so kann der Verlauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (c) durch das folgende Formelschema veranschaulicht werden:



Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (c) als Ausgangsstoffe benötigten Pyrazolylcarboxanilide sind durch die Formel (Ia) allgemein definiert. In dieser Formel (Ia) haben  $R^1$ ,  $R^2$  und  $R^3$  bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt für diese Reste angegeben wurden.

Die Pyrazolylcarboxanilide der Formel (Ia) sind bekannt (vgl. WO 03/010149).

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (c) als Ausgangsstoffe weiterhin benötigten Halogenide der Formel (V) sind bereits im Zusammenhang mit dem erfindungsgemäßen Verfahren (d) beschrieben worden.

Als Verdünnungsmittel zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) kommen alle inerten organischen Lösungsmittel in Betracht. Hierzu gehören vorzugsweise aliphatische, alicyclische oder aromatische Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Petrolether, Hexan, Heptan, Cyclohexan, Methylcyclohexan, Benzol, Toluol, Xylol oder Decalin; halogenierte Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Chlorbenzol, Dichlorbenzol, Dichlormethan, Chloroform, Tetrachlormethan, Dichlorethan oder Trichlorethan; Ether, wie Diethylether, Diisopropylether, Methyl-t-butylether, Methyl-tert-Amylether, Dioxan, Tetrahydrofuran, 1,2-Dimethoxyethan, 1,2-Diethoxyethan oder Anisol oder Amide, wie N,N-Dimethylformamid, N,N-Dimethylacetamid, N-Methylformanilid, N-Methylpyrrolidon oder Hexamethylphosphorsäuretriamid.

Das erfindungsgemäße Verfahren (a) wird gegebenenfalls in Gegenwart eines geeigneten Säureakzeptors durchgeführt. Als solche kommen alle üblichen anorganischen oder organischen Basen infrage. Hierzu gehören vorzugsweise Erdalkalimetall- oder Alkalimetallhydride, -hydroxide, -amide, -alkoholate, -acetate, -carbonate oder -hydrogencarbonate, wie beispielsweise Natriumhydrid, Natriumamid, Natrium-methylat, Natrium-ethylat, Kalium-tert.-butylat, Natriumhydroxid, Kaliumhydroxid, Ammoniumhydroxid, Natriumacetat, Kaliumacetat, Calciumacetat, Ammoniumacetat, Natriumcarbonat, Kaliumcarbonat, Kaliumhydrogencarbonat, Natriumhydrogencarbonat oder Ammoniumcarbonat, sowie tertiäre Amine, wie Trimethylamin, Triethylamin, Tributylamin, N,N-Dimethylanilin, N,N-Dimethyl-benzylamin, Pyridin, N-Methylpiperidin, N-Methylmorpholin, N,N-Dimethylaminopyridin, Diazabicyclooctan (DABCO), Diazabicyclononen (DBN) oder Diazabicycloundecen (DBU).

Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen von 0°C bis 150°C, vorzugsweise bei Temperaturen von 0°C bis 80°C.

Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) zur Herstellung der Verbindungen der Formel (I) setzt man pro mol des Carbonsäure-Derivates der Formel (II) im allgemeinen 0,2 bis 5 mol, vorzugsweise 0,5 bis 2 mol an Anilinderivat der Formel (III) ein.

- 5 Als Verdünnungsmittel zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) kommen alle inerten organischen Lösungsmittel in Betracht. Hierzu gehören vorzugsweise aliphatische, alicyclische oder aromatische Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Petrolether, Hexan, Heptan, Cyclohexan, Methylcyclohexan, Benzol, Toluol, Xylol oder Decalin; Ether, wie Diethylether, Diisopropylether, Methyl-t-butylether, Methyl-t-Amylether, Dioxan, Tetrahydrofuran, 1,2-Dimethoxyethan, 1,2-Diethoxyethan oder Anisol oder Alkohole, wie Methanol, Ethanol, n- oder i-Propanol, n-, i-, sec- oder tert-Butanol, Ethandiol, Propan-1,2-diol, Ethoxyethanol, Methoxyethanol, Diethylenglykolmonomethylether oder Diethylenglykolmonoethylether.
- 10

- Das erfindungsgemäße Verfahren (b) wird gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators durchgeführt. Als solche kommen alle Katalysatoren infrage, die für Hydrierungen üblicherweise verwendet werden. Beispielhaft seien genannt: Raney-Nickel, Palladium oder Platin, gegebenenfalls auf einem Trägermaterial, wie beispielsweise Aktivkohle.
- 15

- Die Hydrierung im erfindungsgemäßen Verfahren (b) kann statt in Gegenwart von Wasserstoff in Kombination mit einem Katalysator auch in Anwesenheit von Triethylsilan durchgeführt werden.
- 20

- Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen von 0°C bis 150°C, vorzugsweise bei Temperaturen von 0°C bis 80°C.
- 25

- Als Verdünnungsmittel zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (c) kommen alle inerten organischen Lösungsmittel in Betracht. Hierzu gehören vorzugsweise aliphatische, alicyclische oder aromatische Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Petrolether, Hexan, Heptan, Cyclohexan, Methylcyclohexan, Benzol, Toluol, Xylol oder Decalin; halogenierte Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Chlorbenzol, Dichlorbenzol, Dichlormethan, Chloroform, Tetrachlormethan, Dichlorethan oder Trichlorethan; Ether, wie Diethylether, Diisopropylether, Methyl-tert-butylether, Methyl-tert-Amylether, Dioxan, Tetrahydrofuran, 1,2-Dimethoxyethan, 1,2-Diethoxyethan oder Anisol oder Amide, wie N,N-Dimethylformamid, N,N-Dimethylacetamid, N-Methylformanilid, N-Methylpyrrolidon oder Hexamethylphosphorsäuretriamid.
- 30

Das erfindungsgemäße Verfahren (c) wird in Gegenwart einer Base durchgeführt. Als solche kommen alle üblichen anorganischen oder organischen Basen infrage. Hierzu gehören vorzugsweise Erdalkalimetall- oder Alkalimetallhydride, -hydroxide, -amide, -alkoholate, -acetate, -carbonate oder -hydrogencarbonate, wie beispielsweise Natriumhydrid, Natriumamid, Natrium-methylat, Natrium-ethylat, Kalium-tert.-butylat, Natriumhydroxid, Kaliumhydroxid, Ammoniumhydroxid, Natriumacetat, Kaliumacetat, Calciumacetat, Ammoniumacetat, Natriumcarbonat, Kaliumcarbonat, Kaliumhydrogencarbonat, Natriumhydrogencarbonat oder Caesiumcarbonat, sowie tertiäre Amine, wie Trimethylamin, Triethylamin, Tributylamin, N,N-Dimethylanilin, N,N-Dimethyl-benzylamin, Pyridin, N-Methylpiperidin, N-Methylmorpholin, N,N-Dimethylaminopyridin, Diazabicyclooctan (DABCO), Diazabicyclononen (DBN) oder Diazabicycloundecen (DBU).

Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (c) in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen von 0°C bis 150°C, vorzugsweise bei Temperaturen von 20°C bis 110°C.

Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (c) zur Herstellung der Verbindungen der Formel (I) setzt man pro Mol des Pyrazolylcarboxanilids der Formel (Ia) im allgemeinen 0,2 bis 5 Mol, vorzugsweise 0,5 bis 2 Mol an Halogenid der Formel (V) ein.

Wenn nicht anders angegeben, werden alle erfindungsgemäßen Verfahren im Allgemeinen unter Normaldruck durchgeführt. Es ist jedoch auch möglich, unter erhöhtem oder vermindertem Druck – im Allgemeinen zwischen 0,1 bar und 10 bar – zu arbeiten.

Die erfindungsgemäßen Stoffe weisen eine starke mikrobizide Wirkung auf und können zur Bekämpfung von unerwünschten Mikroorganismen, wie Fungi und Bakterien, im Pflanzenschutz und im Materialschutz eingesetzt werden.

Fungizide lassen sich Pflanzenschutz zur Bekämpfung von Plasmodiophoromycetes, Oomycetes, Chytridiomycetes, Zygomycetes, Ascomycetes, Basidiomycetes und Deuteromycetes einsetzen.

Bakterizide lassen sich im Pflanzenschutz zur Bekämpfung von Pseudomonadaceae, Rhizobiaceae, Enterobacteriaceae, Corynebacteriaceae und Streptomycetaceae einsetzen.

Beispielhaft aber nicht begrenzend seien einige Erreger von pilzlichen und bakteriellen Erkrankungen, die unter die oben aufgezählten Oberbegriffe fallen, genannt:

Xanthomonas-Arten, wie beispielsweise *Xanthomonas campestris* pv. *oryzae*;

- Pseudomonas-Arten, wie beispielsweise *Pseudomonas syringae* pv. *lachrymans*;  
Erwinia-Arten, wie beispielsweise *Erwinia amylovora*;  
Pythium-Arten, wie beispielsweise *Pythium ultimum*;  
Phytophthora-Arten, wie beispielsweise *Phytophthora infestans*;  
5 Pseudoperonospora-Arten, wie beispielsweise *Pseudoperonospora humuli* oder  
*Pseudoperonospora cubensis*;  
Plasmopara-Arten, wie beispielsweise *Plasmopara viticola*;  
Bremia-Arten, wie beispielsweise *Bremia lactucae*;  
Peronospora-Arten, wie beispielsweise *Peronospora pisi* oder *P. brassicae*;  
10 Erysiphe-Arten, wie beispielsweise *Erysiphe graminis*;  
Sphaerotheca-Arten, wie beispielsweise *Sphaerotheca fuliginea*;  
Podosphaera-Arten, wie beispielsweise *Podosphaera leucotricha*;  
Venturia-Arten, wie beispielsweise *Venturia inaequalis*;  
Pyrenophora-Arten, wie beispielsweise *Pyrenophora teres* oder *P. graminea*;  
15 (Konidienform: *Drechslera*, Syn: *Helminthosporium*);  
*Cochliobolus*-Arten, wie beispielsweise *Cochliobolus sativus*  
(Konidienform: *Drechslera*, Syn: *Helminthosporium*);  
*Uromyces*-Arten, wie beispielsweise *Uromyces appendiculatus*;  
*Puccinia*-Arten, wie beispielsweise *Puccinia recondita*;  
20 *Sclerotinia*-Arten, wie beispielsweise *Sclerotinia sclerotiorum*;  
*Tilletia*-Arten, wie beispielsweise *Tilletia caries*;  
*Ustilago*-Arten, wie beispielsweise *Ustilago nuda* oder *Ustilago avenae*;  
*Pellicularia*-Arten, wie beispielsweise *Pellicularia sasakii*;  
*Pyricularia*-Arten, wie beispielsweise *Pyricularia oryzae*;  
25 *Fusarium*-Arten, wie beispielsweise *Fusarium culmorum*;  
*Botrytis*-Arten, wie beispielsweise *Botrytis cinerea*;  
*Septoria*-Arten, wie beispielsweise *Septoria nodorum*;  
*Leptosphaeria*-Arten, wie beispielsweise *Leptosphaeria nodorum*;  
*Cercospora*-Arten, wie beispielsweise *Cercospora canescens*;  
30 *Alternaria*-Arten, wie beispielsweise *Alternaria brassicae*;  
*Pseudocercospora*-Arten, wie beispielsweise *Pseudocercospora herpotrichoides*;  
*Rhizoctonia*-Arten, wie beispielsweise *Rhizoctonia solani*.

- Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe weisen auch eine starke stärkende Wirkung in Pflanzen auf. Sie  
35 eignen sich daher zur Mobilisierung pflanzeigener Abwehrkräfte gegen Befall durch unerwünschte  
Mikroorganismen.



Unter pflanzenstärkenden (resistenzinduzierenden) Stoffen sind im vorliegenden Zusammenhang solche Substanzen zu verstehen, die in der Lage sind, das Abwehrsystem von Pflanzen so zu stimulieren, dass die behandelten Pflanzen bei nachfolgender Inokulation mit unerwünschten Mikroorganismen weitgehende Resistenz gegen diese Mikroorganismen entfalten.

5

Unter unerwünschten Mikroorganismen sind im vorliegenden Fall phytopathogene Pilze, Bakterien und Viren zu verstehen. Die erfindungsgemäßen Stoffe können also eingesetzt werden, um Pflanzen innerhalb eines gewissen Zeitraumes nach der Behandlung gegen den Befall durch die genannten Schaderreger zu schützen. Der Zeitraum, innerhalb dessen Schutz herbeigeführt wird, erstreckt sich  
10 im allgemeinen von 1 bis 10 Tage, vorzugsweise 1 bis 7 Tage nach der Behandlung der Pflanzen mit den Wirkstoffen.

Die gute Pflanzenverträglichkeit der Wirkstoffe in den zur Bekämpfung von Pflanzenkrankheiten notwendigen Konzentrationen erlaubt eine Behandlung von oberirdischen Pflanzenteilen, von Pflanz-  
15 und Saatgut, und des Bodens.

Dabei lassen sich die erfindungsgemäßen Wirkstoffe mit besonders gutem Erfolg zur Bekämpfung von Getreidekrankheiten, wie beispielsweise gegen Puccinia-Arten und von Krankheiten im Wein-, Obst- und Gemüseanbau, wie beispielsweise gegen Botrytis-, Venturia- oder Alternaria-Arten,  
20 einsetzen.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe eignen sich auch zur Steigerung des Ernteertrages. Sie sind außerdem mindertoxisch und weisen eine gute Pflanzenverträglichkeit auf.

25 Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können gegebenenfalls in bestimmten Konzentrationen und Aufwandmengen auch als Herbizide, zur Beeinflussung des Pflanzenwachstums, sowie zur Bekämpfung von tierischen Schädlingen verwendet werden. Sie lassen sich gegebenenfalls auch als Zwischen- und Vorprodukte für die Synthese weiterer Wirkstoffe einsetzen.

30 Erfindungsgemäß können alle Pflanzen und Pflanzenteile behandelt werden. Unter Pflanzen werden hierbei alle Pflanzen und Pflanzenpopulationen verstanden, wie erwünschte und unerwünschte Wildpflanzen oder Kulturpflanzen (einschließlich natürlich vorkommender Kulturpflanzen). Kulturpflanzen können Pflanzen sein, die durch konventionelle Züchtungs- und Optimierungsmethoden oder durch biotechnologische und gentechnologische Methoden oder Kombinationen dieser Methoden  
35 erhalten werden können, einschließlich der transgenen Pflanzen und einschließlich der durch Sortenschutzrechte schützbaeren oder nicht schützbaeren Pflanzensorten. Unter Pflanzenteilen sollen alle

oberirdischen und unterirdischen Teile und Organe der Pflanzen, wie Spross, Blatt, Blüte und Wurzel verstanden werden, wobei beispielhaft Blätter, Nadeln, Stängel, Stämme, Blüten, Fruchtkörper, Früchte und Samen sowie Wurzeln, Knollen und Rhizome aufgeführt werden. Zu den Pflanzenteilen gehört auch Erntegut sowie vegetatives und generatives Vermehrungsmaterial, beispielsweise  
5 Stecklinge, Knollen, Rhizome, Ableger und Samen.

Die erfindungsgemäße Behandlung der Pflanzen und Pflanzenteile mit den Wirkstoffen erfolgt direkt oder durch Einwirkung auf deren Umgebung, Lebensraum oder Lagerraum nach den üblichen Behandlungsmethoden, z.B. durch Tauchen, Sprühen, Verdampfen, Vernebeln, Streuen, Aufstreichen  
10 und bei Vermehrungsmaterial, insbesondere bei Samen, weiterhin durch ein- oder mehrschichtiges Umhüllen.

Im Materialschutz lassen sich die erfindungsgemäßen Stoffe zum Schutz von technischen Materialien gegen Befall und Zerstörung durch unerwünschte Mikroorganismen einsetzen.

15 Unter technischen Materialien sind im vorliegenden Zusammenhang nichtlebende Materialien zu verstehen, die für die Verwendung in der Technik zubereitet worden sind. Beispielsweise können technische Materialien, die durch erfindungsgemäße Wirkstoffe vor mikrobieller Veränderung oder Zerstörung geschützt werden sollen, Klebstoffe, Leime, Papier und Karton, Textilien, Leder, Holz, Anstrichmittel und Kunststoffartikel, Kühlschmierstoffe und andere Materialien sein, die von Mikroor-  
20 ganismen befallen oder zersetzt werden können. Im Rahmen der zu schützenden Materialien seien auch Teile von Produktionsanlagen, beispielsweise Kühlwasserkreisläufe, genannt, die durch Vermehrung von Mikroorganismen beeinträchtigt werden können. Im Rahmen der vorliegenden Erfindung seien als technische Materialien vorzugsweise Klebstoffe, Leime, Papiere und Kartone,  
25 Leder, Holz, Anstrichmittel, Kühlschmiermittel und Wärmeübertragungsflüssigkeiten genannt, besonders bevorzugt Holz.

Als Mikroorganismen, die einen Abbau oder eine Veränderung der technischen Materialien bewirken können, seien beispielsweise Bakterien, Pilze, Hefen, Algen und Schleimorganismen genannt. Vor-  
30 zugsweise wirken die erfindungsgemäßen Wirkstoffe gegen Pilze, insbesondere Schimmelpilze, holzverfärbende und holzerstörende Pilze (Basidiomyceten) sowie gegen Schleimorganismen und Algen.

Es seien beispielsweise Mikroorganismen der folgenden Gattungen genannt:

Alternaria, wie *Alternaria tenuis*,  
35 Aspergillus, wie *Aspergillus niger*,  
Chaetomium, wie *Chaetomium globosum*,

- Coniophora, wie Coniophora puetana,  
Lentinus, wie Lentinus tigrinus,  
Penicillium, wie Penicillium glaucum,  
Polyporus, wie Polyporus versicolor,  
5 Aureobasidium, wie Aureobasidium pullulans,  
Sclerophoma, wie Sclerophoma pityophila,  
Trichoderma, wie Trichoderma viride,  
Escherichia, wie Escherichia coli,  
Pseudomonas, wie Pseudomonas aeruginosa,  
10 Staphylococcus, wie Staphylococcus aureus.

- Die Wirkstoffe können in Abhängigkeit von ihren jeweiligen physikalischen und/ oder chemischen Eigenschaften in die üblichen Formulierungen überführt werden, wie Lösungen, Emulsionen, Suspensionen, Pulver, Schäume, Pasten, Granulate, Aerosole, Feinstverkapselungen in polymeren  
15 Stoffen und in Hüllmassen für Saatgut, sowie ULV-Kalt- und Warmnebel-Formulierungen.

- Diese Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z.B. durch Vermischen der Wirkstoffe mit Streckmitteln, also flüssigen Lösungsmitteln, unter Druck stehenden verflüssigten Gasen und/oder festen Trägerstoffen, gegebenenfalls unter Verwendung von oberflächenaktiven Mitteln,  
20 also Emulgiermitteln und/oder Dispergiermitteln und/oder schaum erzeugenden Mitteln. Im Falle der Benutzung von Wasser als Streckmittel können z.B. auch organische Lösungsmittel als Hilfslösungsmittel verwendet werden. Als flüssige Lösungsmittel kommen im Wesentlichen infrage: Aromaten, wie Xylol, Toluol oder Alkylnaphthaline, chlorierte Aromaten oder chlorierte aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Chlorbenzole, Chlorethylene oder Methylenchlorid, aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Cyclohexan oder Paraffine, z.B. Erdölfraktionen, Alkohole, wie Butanol oder Glycol  
25 sowie deren Ether und Ester, Ketone, wie Aceton, Methylethylketon, Methylisobutylketon oder Cyclohexanon, stark polare Lösungsmittel, wie Dimethylformamid und Dimethylsulfoxid, sowie Wasser. Mit verflüssigten gasförmigen Streckmitteln oder Trägerstoffen sind solche Flüssigkeiten gemeint, welche bei normaler Temperatur und unter Normaldruck gasförmig sind, z.B. Aerosol-  
30 Treibgase, wie Halogenkohlenwasserstoffe sowie Butan, Propan, Stickstoff und Kohlendioxid. Als feste Trägerstoffe kommen infrage: z.B. natürliche Gesteinsmehle, wie Kaoline, Tonerden, Talkum, Kreide, Quarz, Attapulgit, Montmorillonit oder Diatomeenerde und synthetische Gesteinsmehle, wie hochdisperse Kieselsäure, Aluminiumoxid und Silikate. Als feste Trägerstoffe für Granulate kommen infrage: z.B. gebrochene und fraktionierte natürliche Gesteine wie Calcit, Bims, Marmor, Sepiolith,  
35 Dolomit sowie synthetische Granulate aus anorganischen und organischen Mehlen sowie Granulate aus organischem Material wie Sägemehl, Kokosnussschalen, Maiskolben und Tabakstängel. Als

Emulgier und/oder schaumzeugende Mittel kommen infrage: z.B. nichtionogene und anionische Emulgatoren, wie Polyoxyethylen-Fettsäureester, Polyoxyethylen-Fettalkoholether, z.B. Alkylaryl-polyglycolether, Alkylsulfonate, Alkylsulfate, Arylsulfonate sowie Eiweißhydrolysate. Als Dispergiermittel kommen infrage: z.B. Lignin-Sulfitablaugen und Methylcellulose.

5

Es können in den Formulierungen Haftmittel wie Carboxymethylcellulose, natürliche und synthetische pulverige, körnige oder latexförmige Polymere verwendet werden, wie Gummiarabicum, Polyvinylalkohol, Polyvinylacetat, sowie natürliche Phospholipide, wie Kepheline und Lecithine, und synthetische Phospholipide. Weitere Additive können mineralische und vegetabile Öle sein.

10

Es können Farbstoffe wie anorganische Pigmente, z.B. Eisenoxid, Titanoxid, Ferrocyanblau und organische Farbstoffe, wie Alizarin-, Azo- und Metallphthalocyaninfarbstoffe und Spurennährstoffe, wie Salze von Eisen, Mangan, Bor, Kupfer, Kobalt, Molybdän und Zink verwendet werden.

15 Die Formulierungen enthalten im allgemeinen zwischen 0,1 und 95 Gewichtsprozent Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90 %.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als solche oder in ihren Formulierungen auch in Mischung mit bekannten Fungiziden, Bakteriziden, Akariziden, Nematiziden oder Insektiziden  
20 verwendet werden, um so z.B. das Wirkungsspektrum zu verbreitern oder Resistenzentwicklungen vorzubeugen. In vielen Fällen erhält man dabei synergistische Effekte, d.h. die Wirksamkeit der Mischung ist größer als die Wirksamkeit der Einzelkomponenten.

Als Mischpartner kommen zum Beispiel folgende Verbindungen infrage:

25 **Fungizide:**

2-Phenylphenol; 8-Hydroxychinolinsulfat; Acibenzolar-S-methyl; Aldimorph; Amidoflumet; Ampropylfos; Ampropylfos-potassium; Andoprim; Anilazine; Azaconazole; Azoxystrobin; Benalaxyl; Benodanil; Benomyl; Benthiavalicarb-isopropyl; Benzamacril; Benzamacril-isobutyl; Bilanafos; Binapacryl; Biphenyl; Bitertanol; Blasticidin-S; Bromuconazole; Bupirimate; Buthiobate; Butylamin; Calcium polysulfide; Capsimycin; Captafol; Captan; Carbendazim; Carboxin; Carpropamid; Carvone; Chinomethionat; Chlobenthiazone; Chlorfenazole; Chloroneb; Chlorothalonil; Chlozolate; Clozylacon; Cyazofamid; Cyflufenamid; Cymoxanil; Cyproconazole; Cyprodinil; Cyprofuram; Dagger G; Debacarb; Dichlofluanid; Dichlone; Dichlorophen; Diclocymet; Diclomezine; Dicloran; Diethofencarb; Difenoconazole; Diflumetorim; Dimethirimol; Dimethomorph; Dimoxystrobin; Diniconazole; Diniconazole-M; Dinocap;  
30 Diphénylamine; Dipyrithione; Ditalimfos; Dithianon; Dodine; Drazoxolon; Edifenphos; Epoxiconazole; Ethaboxam; Ethirimol; Etridiazole; Famoxadone; Fenamidone; Fenapanil; Fenarimol; Fenbuconazole;

35

- Fenfuram; Fenhexamid; Fenitropan; Fenoxanil; Fempiclonil; Fenpropidin; Fenpropimorph; Ferbam; Fluazinam; Flubenzimine; Fludioxonil; Flumetover; Flumorph; Fluoromide; Fluoxastrobin; Fluquinconazole; Flurprimidol; Flusilazole; Flusulfamide; Flutolanil; Flutriafol; Folpet; Fosetyl-Al; Fosetyl-sodium; Fuberidazole; Furalaxyl; Furametpyr; Furcarbanil; Furmecyclox; Guazatine; Hexachlorobenzene; Hexaconazole; Hymexazol; Imazalil; Imibenconazole; Iminoctadine triacetate; Iminoctadine tris(albesil; Iodocarb; Ipconazole; Iprobenfos; Iprodione; Iprovalicarb; Irumamycin; Isoprothiolane; Isovaldione; Kasugamycin; Kresoxim-methyl; Mancozeb; Maneb; Meferimzone; Mepanipyrim; Mepronil; Metalaxyl; Metalaxyl-M; Metconazole; Methasulfocarb; Methfuroxam; Metiram; Metominostrobin; Metsulfovax; Mildiomycin; Myclobutanil; Myclozolin; Natamycin; Nicobifen; Nitrothal-isopropyl;
- 10 Noviflumuron; Nuarimol; Ofurace; Orysastrobin; Oxadixyl; Oxolinic acid; Oxpoconazole; Oxycarboxin; Oxyfenthiin; Paclobutrazol; Pefurazoate; Penconazole; Pencycuron; Phosdiphen; Phthalide; Picoxystrobin; Piperalin; Polyoxins; Polyoxorim; Probenazole; Prochloraz; Procymidone; Propamocarb; Propanosine-sodium; Propiconazole; Propineb; Proquinazid; Prothioconazole; Pyraclostrobin; Pyrazophos; Pyrifenox; Pyrimethanil; Pyroquilon; Pyroxyfur; Pyrrolnitrine; Quinconazole; Quinoxifen; Quin-
- 15 tozene; Simeconazole; Spiroxamine; Sulfur; Tebuconazole; Tecloftalam; Tecnazene; Tetcyclacis; Tetraconazole; Thiabendazole; Thicyofen; Thiifluzamide; Thiophanate-methyl; Thiram; Tioxymid; Tolclofosmethyl; Tolyfluanid; Triadimefon; Triadimenol; Triazbutil; Triazoxide; Tricyclamide; Tricyclazole; Tridemorph; Trifloxystrobin; Triflumizole; Triforine; Triticonazole; Uniconazole; Validamycin A; Vinclozolin; Zineb; Ziram; Zoxamide; (2S)-N-[2-[4-[[3-(4-Chlorphenyl)-2-propinyl]oxy]-3-methoxyphenyl]ethyl]-3-methyl-2-[(methylsulfonyl)amino]-butanamid; 1-(1-Naphthalenyl)-1H-pyrrol-2,5-dion;
- 20 2,3,5,6-Tetrachlor-4-(methylsulfonyl)-pyridin; 2-Amino-4-methyl-N-phenyl-5-thiazolcarboxamid; 2-Chlor-N-(2,3-dihydro-1,1,3-trimethyl-1H-inden-4-yl)-3-pyridincarboxamide; 3,4,5-Trichlor-2,6-pyridindicarbonitril; Actinovate; cis-1-(4-Chlorphenyl)-2-(1H-1,2,4-triazol-1-yl)-cycloheptanol; Methyl 1-(2,3-dihydro-2,2-dimethyl-1H-inden-1-yl)-1H-imidazol-5-carboxylat; Monokaliumcarbonat; N-(6-Methoxy-
- 25 3-pyridinyl)-cyclopropancarboxamid; N-Butyl-8-(1,1-dimethylethyl)-1-oxaspiro[4.5]decan-3-amin; Natriumtetrathiocarbonat; sowie Kupfersalze und -zubereitungen, wie Bordeaux mixture; Kupferhydroxid; Kupfernaphthenat; Kupferoxychlorid; Kupfersulfat; Cufraneb; Kupferoxid; Mancopper; Oxine-copper.

#### Bakterizide:

- 30 Bronopol, Dichlorophen, Nitrapyrin, Nickel-dimethyldithiocarbamat, Kasugamycin, Octhilinon, Furancarbonsäure, Oxytetracyclin, Probenazol, Streptomycin, Tecloftalam, Kupfersulfat und andere Kupfer-Zubereitungen.

#### Insektizide / Akarizide / Nematizide:

- 35 Abamectin, ABG-9008, Acephate, Acequinocyl, Acetamiprid, Acetoprole, Acrinathrin, AKD-1022, AKD-3059, AKD-3088, Alanycarb, Aldicarb, Aldoxycarb, Allethrin, Allethrin 1R-isomers, Alpha-

- Cypermethrin (Alphamethrin), Amidoflumet, Aminocarb, Amitraz, Avermectin, AZ-60541, Azadirachtin, Azamethiphos, Azinphos-methyl, Azinphos-ethyl, Azocyclotin, *Bacillus popilliae*, *Bacillus sphaericus*, *Bacillus subtilis*, *Bacillus thuringiensis*, *Bacillus thuringiensis* strain EG-2348, *Bacillus thuringiensis* strain GC-91, *Bacillus thuringiensis* strain NCTC-11821, Baculoviren, *Beauveria bassiana*,  
5 *Beauveria tenella*, Benclothiaz, Bendiocarb, Benfuracarb, Bensultap, Benzoximate, Beta-Cyfluthrin, Beta-Cypermethrin, Bifenazate, Bifenthrin, Binapacryl, Bioallethrin, Bioallethrin-S-cyclopentyl-isomer, Bioethanomethrin, Biopermethrin, Bioresmethrin, Bistrifluron, BPMC, Brofenprox, Bromophos-ethyl, Bromopropylate, Bromfenvinfos (-methyl), BTG-504, BTG-505, Bufencarb, Buprofezin, Butathiofos, Butocarboxim, Butoxycarboxim, Butylpyridaben, Cadusafos, Camphechlor, Carbaryl, Carbofuran,  
10 Carbophenothion, Carbosulfan, Cartap, CGA-50439, Chinomethionat, Chlordane, Chlordimeform, Chloethocarb, Chlorethoxyfos, Chlorfenapyr, Chlorfenvinphos, Chlorfluazuron, Chlormephos, Chlorobenzilate, Chloropicrin, Chlorproxyfen, Chlorpyrifos-methyl, Chlorpyrifos (-ethyl), Chlovaporthrin, Chromafenozide, Cis-Cypermethrin, Cis-Resmethrin, Cis-Permethrin, Clocythrin, Cloethocarb, Clofentezine, Clothianidin, Clothiazoben, Codlemone, Coumaphos, Cyanofenphos, Cyanophos, Cycloprene,  
15 Cycloprothrin, *Cydia pomonella*, Cyfluthrin, Cyhalothrin, Cyhexatin, Cypermethrin, Cyphenothrin (1R-trans-isomer), Cyromazine, DDT, Deltamethrin, Demeton-S-methyl, Demeton-S-methylsulphon, Diafenthiuron, Dialifos, Diazinon, Dichlofenthion, Dichlorvos, Dicofol, Dicrotophos, Dicyclanil, Diflubenazuron, Dimefluthrin, Dimethoate, Dimethylvinphos, Dinobuton, Dinocap, Dinotefuran, Diofenolan, Disulfoton, Docusat-sodium, Dofenapyn, DOWCO-439, Eflusilanate, Enamectin, Enamectin-benzoate,  
20 Empenthrin (1R-isomer), Endosulfan, *Entomophthora* spp., EPN, Esfenvalerate, Ethiofencarb, Ethiprole, Ethion, Ethoprophos, Etofenprox, Etoxazole, Etrimfos, Famphur, Fenamiphos, Fenazaquin, Fenbutatin oxide, Fenfluthrin, Fenitrothion, Fenobucarb, Fenothiocarb, Fenoxacrim, Fenoxycarb, Fenpropathrin, Fenpyrad, Fenpyrithrin, Fenpyroximate, Fensulfothion, Fenthion, Fentrifanil, Fenvalerate, Fipronil, Flonicamid, Fluacrypyrim, Fluazuron, Flubenzimine, Flubrocycythrinate, Flucycloxuron, Flucythrinate, Flufenferim, Flufenoxuron, Flufenprox, Flumethrin, Flupyrazofos, Flutenzin (Flufenzine), Fluvalinate, Fonofos, Formetanate, Formothion, Fosmethilan, Fosthiazate, Fubfenprox (Fluproxyfen), Furathiocarb, Gamma-Cyhalothrin, Gamma-HCH, Gossypure, Grandlure, Granuloseviren, Halfenprox, Halofenozone, HCH, HCN-801, Heptenophos, Hexaflumuron, Hexythiazox, Hydramethylnone, Hydroprene, IKA-2002, Imidacloprid, Imiprothrin, Indoxacarb, Iodofenphos, Iprobenfos, Isazofos, Isofenphos, Isoprocarb,  
30 Isoxathion, Ivermectin, Japonilure, Kadethrin, Kempolyederviren, Kinoprene, Lambda-Cyhalothrin, Lindane, Lufenuron, Malathion, Mecarbam, Mesulfenfos, Metaldehyd, Metam-sodium, Methacrifos, Methamidophos, Metharhizium anisopliae, Metharhizium flavoviride, Methidathion, Methiocarb, Methomyl, Methoprene, Methoxychlor, Methoxyfenozide, Metofluthrin, Metolcarb, Metoxadiazone, Mevinphos, Milbemectin, Milbemycin, MKI-245, MON-45700, Monocrotophos, Moxidectin, MTI-800,  
35 Naled, NC-104, NC-170, NC-184, NC-194, NC-196, Niclosamide, Nicotine, Nitenpyram, Nithiazine, NNI-0001, NNI-0101, NNI-0250, NNI-9768, Novaluron, Noviflumuron, OK-5101, OK-5201, OK-9601,

OK-9602, OK-9701, OK-9802, Omethoate, Oxamyl, Oxydemeton-methyl, Paecilomyces fumosoroseus, Parathion-methyl, Parathion (-ethyl), Permethrin (cis-, trans-), Petroleum, PH-6045, Phenothrin (1R-trans isomer), Phenthoate, Phorate, Phosalone, Phosmet, Phosphamidon, Phosphocarb, Phoxim, Piperonyl butoxide, Pirimicarb, Pirimiphos-methyl, Pirimiphos-ethyl, Potassium oleate, Prallethrin, Profenofos, Profluthrin, Promecarb, Propaphos, Propargite, Propetamphos, Propoxur, Prothiofos, Prothoate, Protrifenbute, Pymetrozine, Pyraclofos, Pyresmethrin, Pyrethrum, Pyridaben, Pyridalyl, Pyridaphenthion, Pyridathion, Pyrimidifen, Pyriproxyfen, Quinalphos, Resmethrin, RH-5849, Ribavirin, RU-12457, RU-15525, S-421, S-1833, Salithion, Sebufos, SI-0009, Silafluofen, Spinosad, Spirodiclofen, Spiromesifen, Sulfluramid, Sulfotep, Sulprofos, SZI-121, Tau-Fluvalinate, Tebufenozide, Tebufenpyrad, Tebupirimfos, Teflubenzuron, Tefluthrin, Temephos, Temvinphos, Terbam, Terbufos, Tetrachlorvinphos, Tetradifon, Tetramethrin, Tetramethrin (1R-isomer), Tetrasul, Theta-Cypermethrin, Thiachlopid, Thiamethoxam, Thiapronil, Thiatriphos, Thiocyclam hydrogen oxalate, Thiodicarb, Thiofanox, Thiometon, Thiosultap-sodium, Thuringiensin, Tolfenpyrad, Traloccythrin, Tralomethrin, Transluthrin, Triarathene, Triazamate, Triazophos, Triazuron, Trichlophenidine, Trichlorfon, Trichoderma atroviride, Triflururon, Trimethacarb, Vamidotion, Vaniliprole, Verbutin, Verticillium lecanii, WL-108477, WL-40027, YI-5201, YI-5301, YI-5302, XMC, Xylcarb, ZA-3274, Zeta-Cypermethrin, Zolaprofos, ZXI-8901, die Verbindung 3-Methyl-phenyl-propylcarbamate (Tsumacide Z), die Verbindung 3-(5-Chlor-3-pyridinyl)-8-(2,2,2-trifluorethyl)-8-azabicyclo[3.2.1]octan-3-carbonitril (CAS-Reg.-Nr. 185982-80-3) und das entsprechende 3-endo-Isomere (CAS-Reg.-Nr. 185984-60-5) (vgl. WO 96/37494, WO 98/25923), sowie Präparate, welche insektizid wirksame Pflanzenextrakte, Nematoden, Pilze oder Viren enthalten.

Auch eine Mischung mit anderen bekannten Wirkstoffen, wie Herbiziden oder mit Düngemitteln und Wachstumsregulatoren, Safener bzw. Semiochemicals ist möglich.

Darüber hinaus weisen die erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) auch sehr gute antimykotische Wirkungen auf. Sie besitzen ein sehr breites antimykotisches Wirkungsspektrum, insbesondere gegen Dermatophyten und Sprosspilze, Schimmel und diphase Pilze (z.B. gegen Candida-Spezies wie Candida albicans, Candida glabrata) sowie Epidermophyton floccosum, Aspergillus-Spezies wie Aspergillus niger und Aspergillus fumigatus, Trichophyton-Spezies wie Trichophyton mentagrophytes, Microsporon-Spezies wie Microsporon canis und audouinii. Die Aufzählung dieser Pilze stellt keinesfalls eine Beschränkung des erfassbaren mykotischen Spektrums dar, sondern hat nur erläuternden Charakter.

Die Wirkstoffe können als solche, in Form ihrer Formulierungen oder den daraus bereiteten Anwendungsformen, wie gebrauchsfertige Lösungen, Suspensionen, Spritzpulver, Pasten, lösliche Pulver, Stäubemittel und Granulate angewendet werden. Die Anwendung geschieht in üblicher

Weise, z.B. durch Gießen, Verspritzen, Versprühen, Verstreuen, Verstäuben, Verschäumen, Bestreichen usw. Es ist ferner möglich, die Wirkstoffe nach dem Ultra-Low-Volume-Verfahren auszubringen oder die Wirkstoffzubereitung oder den Wirkstoff selbst in den Boden zu injizieren. Es kann auch das Saatgut der Pflanzen behandelt werden.

5

Beim Einsatz der erfindungsgemäßen Wirkstoffe als Fungizide können die Aufwandmengen je nach Applikationsart innerhalb eines größeren Bereiches variiert werden. Bei der Behandlung von Pflanzenteilen liegen die Aufwandmengen an Wirkstoff im allgemeinen zwischen 0,1 und 10.000 g/ha, vorzugsweise zwischen 10 und 1.000 g/ha. Bei der Saatgutbehandlung liegen die Aufwandmengen an Wirkstoff im allgemeinen zwischen 0,001 und 50 g pro Kilogramm Saatgut, vorzugsweise zwischen 0,01 und 10 g pro Kilogramm Saatgut. Bei der Behandlung des Bodens liegen die Aufwandmengen an Wirkstoff im allgemeinen zwischen 0,1 und 10.000 g/ha, vorzugsweise zwischen 1 und 5.000 g/ha.

15 Wie bereits oben erwähnt, können erfindungsgemäß alle Pflanzen und deren Teile behandelt werden. In einer bevorzugten Ausführungsform werden wild vorkommende oder durch konventionelle biologische Zuchtmethoden, wie Kreuzung oder Protoplastenfusion erhaltenen Pflanzenarten und Pflanzensorten sowie deren Teile behandelt. In einer weiteren bevorzugten Ausführungsform werden transgene Pflanzen und Pflanzensorten, die durch gentechnologische Methoden gegebenenfalls in Kombination mit konventionellen Methoden erhalten wurden (Genetically Modified Organisms) und deren Teile behandelt. Der Begriff „Teile“ bzw. „Teile von Pflanzen“ oder „Pflanzenteile“ wurde oben erläutert.

25 Besonders bevorzugt werden erfindungsgemäß Pflanzen der jeweils handelsüblichen oder in Gebrauch befindlichen Pflanzensorten behandelt. Unter Pflanzensorten versteht man Pflanzen mit neuen Eigenschaften („Traits“), die sowohl durch konventionelle Züchtung, durch Mutagenese oder durch rekombinante DNA-Techniken gezüchtet worden sind. Dies können Sorten, Rassen, Bio- und Genotypen sein.

30 Je nach Pflanzenarten bzw. Pflanzensorten, deren Standort und Wachstumsbedingungen (Böden, Klima, Vegetationsperiode, Ernährung) können durch die erfindungsgemäße Behandlung auch überadditive („synergistische“) Effekte auftreten. So sind beispielsweise erniedrigte Aufwandmengen und/oder Erweiterungen des Wirkungsspektrums und/oder eine Verstärkung der Wirkung der erfindungsgemäß verwendbaren Stoffe und Mittel, besseres Pflanzenwachstum, erhöhte Toleranz gegenüber hohen oder niedrigen Temperaturen, erhöhte Toleranz gegen Trockenheit oder gegen Wasser- bzw. Bodensalzgehalt, erhöhte Blühleistung, erleichterte Ernte, Beschleunigung der Reife,

35



höhere Ernteerträge, höhere Qualität und/oder höherer Ernährungswert der Ernteprodukte, höhere Lagerfähigkeit und/oder Bearbeitbarkeit der Ernteprodukte möglich, die über die eigentlich zu erwartenden Effekte hinausgehen.

- 5 Zu den bevorzugten erfindungsgemäß zu behandelnden transgenen (gentechnologisch erhaltenen) Pflanzen bzw. Pflanzensorten gehören alle Pflanzen, die durch die gentechnologische Modifikation genetisches Material erhielten, welches diesen Pflanzen besondere vorteilhafte wertvolle Eigenschaften („Traits“) verleiht. Beispiele für solche Eigenschaften sind besseres Pflanzenwachstum, erhöhte Toleranz gegenüber hohen oder niedrigen Temperaturen, erhöhte Toleranz gegen Trockenheit oder  
10 gegen Wasser- bzw. Bodensalzgehalt, erhöhte Blühleistung, erleichterte Ernte, Beschleunigung der Reife, höhere Ernteerträge, höhere Qualität und/oder höherer Ernährungswert der Ernteprodukte, höhere Lagerfähigkeit und/oder Bearbeitbarkeit der Ernteprodukte. Weitere und besonders hervorgehobene Beispiele für solche Eigenschaften sind eine erhöhte Abwehr der Pflanzen gegen tierische und mikrobielle Schädlinge, wie gegenüber Insekten, Milben, pflanzenpathogenen Pilzen, Bakterien  
15 und/oder Viren sowie eine erhöhte Toleranz der Pflanzen gegen bestimmte herbizide Wirkstoffe. Als Beispiele transgener Pflanzen werden die wichtigen Kulturpflanzen, wie Getreide (Weizen, Reis), Mais, Soja, Kartoffel, Baumwolle, Tabak, Raps sowie Obstpflanzen (mit den Früchten Äpfel, Birnen, Zitrusfrüchten und Weintrauben) erwähnt, wobei Mais, Soja, Kartoffel, Baumwolle, Tabak und Raps besonders hervorgehoben werden. Als Eigenschaften („Traits“) werden besonders hervorgehoben die  
20 erhöhte Abwehr der Pflanzen gegen Insekten, Spinnentiere, Nematoden und Schnecken durch in den Pflanzen entstehende Toxine, insbesondere solche, die durch das genetische Material aus *Bacillus Thuringiensis* (z.B. durch die Gene *CryIA(a)*, *CryIA(b)*, *CryIA(c)*, *CryIIA*, *CryIIIa*, *CryIIIB2*, *Cry9c*, *Cry2Ab*, *Cry3Bb* und *CryIF* sowie deren Kombinationen) in den Pflanzen erzeugt werden (im Folgenden „Bt Pflanzen“). Als Eigenschaften („Traits“) werden auch besonders hervorgehoben die  
25 erhöhte Abwehr von Pflanzen gegen Pilze, Bakterien und Viren durch Systemische Akquirierte Resistenz (SAR), Systemin, Phytoalexine, Elicitoren sowie Resistenzgene und entsprechend exprimierte Proteine und Toxine. Als Eigenschaften („Traits“) werden weiterhin besonders hervorgehoben die erhöhte Toleranz der Pflanzen gegenüber bestimmten herbiziden Wirkstoffen, z.B. Imidazolinen, Sulfonylharnstoffen, Glyphosate oder Phosphinotricin (z.B. „PAT“-Gen). Die jeweils die ge-  
30 wünschten Eigenschaften („Traits“) verleihenden Gene können auch in Kombinationen miteinander in den transgenen Pflanzen vorkommen. Als Beispiele für „Bt Pflanzen“ seien Maissorten, Baumwollsorten, Sojasorten und Kartoffelsorten genannt, die unter den Handelsbezeichnungen YIELD GARD® (z.B. Mais, Baumwolle, Soja), KnockOut® (z.B. Mais), StarLink® (z.B. Mais), Bollgard® (Baumwolle), Nucoton® (Baumwolle) und NewLeaf® (Kartoffel) vertrieben werden. Als Beispiele  
35 für Herbizid tolerante Pflanzen seien Maissorten, Baumwollsorten und Sojasorten genannt, die unter den Handelsbezeichnungen Roundup Ready® (Toleranz gegen Glyphosate z.B. Mais, Baumwolle,

Soja), Liberty Link® (Toleranz gegen Phosphinotricin, z.B. Raps), IMI® (Toleranz gegen Imidazolinone) und STS® (Toleranz gegen Sulfonylharnstoffe z.B. Mais) vertrieben werden. Als Herbizid resistente (konventionell auf Herbizid-Toleranz gezüchtete) Pflanzen seien auch die unter der Bezeichnung Clearfield® vertriebenen Sorten (z.B. Mais) erwähnt. Selbstverständlich gelten diese

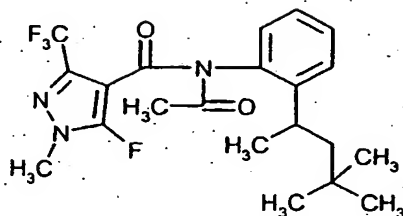
5 Aussagen auch für in der Zukunft entwickelte bzw. zukünftig auf den Markt kommende Pflanzensorten mit diesen oder zukünftig entwickelten genetischen Eigenschaften („Traits“).

Die aufgeführten Pflanzen können besonders vorteilhaft erfindungsgemäß mit den Verbindungen der allgemeinen Formel (I) bzw. den erfindungsgemäßen Wirkstoffmischungen behandelt werden. Die

10 bei den Wirkstoffen bzw. Mischungen oben angegebenen Vorzugsbereiche gelten auch für die Behandlung dieser Pflanzen. Besonders hervorgehoben sei die Pflanzenbehandlung mit den im vorliegenden Text speziell aufgeführten Verbindungen bzw. Mischungen.

Die Herstellung und die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe geht aus den folgenden

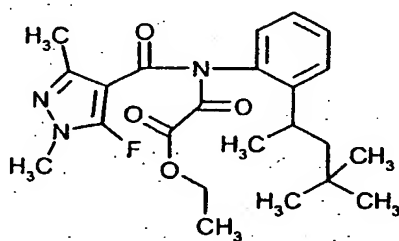
15 Beispielen hervor.

HerstellungsbeispieleBeispiel 1

5

Zu einer Lösung von 300.0 mg (0.78 mmol) 5-Fluor-1-methyl-3-(trifluormethyl)-N-[2-(1,3,3-trimethylbutyl)phenyl]-1H-pyrazol-4-carboxamid in 10.0 ml Tetrahydrofuran werden bei Raumtemperatur 56.0 mg (2.3 mmol) Natriumhydrid gegeben. Die Reaktionsmischung wird 15 min. bei Raumtemperatur gerührt, mit 366.6 mg (4.7 mmol) Acetylchlorid und 2.2 g (21.2 mmol) Essigsäureanhydrid versetzt. Nach 16 h Erhitzen unter Rückfluss wird die Reaktionsmischung auf 100 ml Methanol und 3 ml Triethylamin gegeben, filtriert und im Vakuum aufkonzentriert. Umkristallisation aus Cyclohexan liefert 182 mg (54.7 % der Theorie) an N-Acetyl-5-fluor-1-methyl-3-(trifluormethyl)-N-[2-(1,3,3-trimethylbutyl)phenyl]-1H-pyrazol-4-carboxamid mit dem  $\log P$  (pH 2.3) = 4.63.

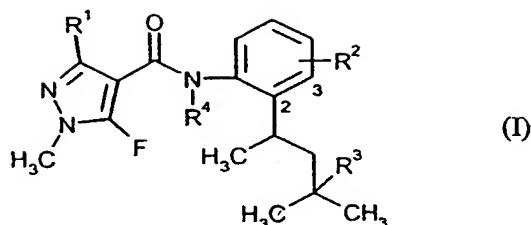
15

Beispiel 2

1.66 g (5.0 mmol) 5-Fluor-1,3-dimethyl-N-[2-(1,3,3-trimethylbutyl)phenyl]-1H-pyrazol-4-carboxamid und 1.02 g (7.4 mmol) Ethyl-chlor(oxo)acetat wurden in 20 ml Tetrachlorkohlenstoff gelöst und für 4 h unter Rückfluss gerührt. Das Reaktionsgemisch wurde auf Raumtemperatur abgekühlt und eingengt. Man erhielt 2 g (93 % der Theorie) of Ethyl-[[[(5-fluor-1,3-dimethyl-1H-pyrazol-4-yl)carbonyl][2-(1,3,3-trimethylbutyl)phenyl]amino](oxo)acetat mit dem  $\log P$  (pH 2.3) = 4.40.

25 Analog den Beispielen 1 und 2, sowie entsprechend den Angaben in den allgemeinen Verfahrensbeschreibungen, werden die in der nachstehenden Tabelle 1 genannten Verbindungen der Formel (I) erhalten.

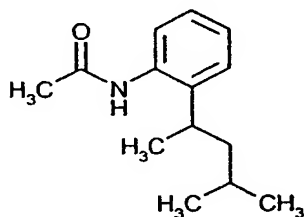
Tabelle 1



Bsp.	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	logP
3	-CH <sub>3</sub>	-H	-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	3.64
4	-CH <sub>3</sub>	-H	-H	-CH <sub>3</sub>	3.34
5	-CF <sub>3</sub>	-H	-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	4.45
6	-CF <sub>3</sub>	-H	-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> -O-CH <sub>3</sub>	4.60

## 5 Herstellung von Ausgangsstoffe der Formel (III)

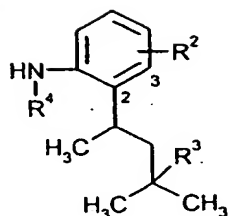
### Beispiel (III-1)



- 10 Zu einer Lösung von 500 mg (2.8 mmol) 2-(1,3-Dimethyl-butyl)-phenylamin in 35 ml Acetonitril wurden langsam 243 mg (3.1 mmol) Acetylchlorid gegeben. Das Reaktionsgemisch wurde für 1 h bei Raumtemperatur gerührt und anschließend in Wasser gegossen. Nach Extraktion mit Essigsäureethylester wurden die organischen Phasen über Natriumsulfat getrocknet und unter vermindertem Druck eingengt. Man erhielt 600 mg (98 % der Theorie) an N-[2-(1,3-Dimethyl-butyl)-phenyl]-acetamid
- 15 mit dem logP (pH 2.3) = 2.65.

Analog Beispiel (III-1), sowie entsprechend den Angaben in den allgemeinen Verfahrensbeschreibungen, werden die in der nachstehenden Tabelle 2 genannten Verbindungen der Formel (III) erhalten.

Tabelle 2



(III)

Bsp.	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	logP
III-2	-H	-H	-C(=O)H	2.78
III-3	-H	-H	-C(=O)CH <sub>2</sub> OCH <sub>3</sub>	3.24

- 5 Die Bestimmung der in den voranstehenden Tabellen und Herstellungsbeispielen angegebenen logP-Werte erfolgt gemäß EEC-Directive 79/831 Annex V.A8 durch HPLC (High Performance Liquid Chromatography) an einer Phasenumkehrsäule (C 18). Temperatur: 43°C.

- 10 Die Bestimmung erfolgt im sauren Bereich bei pH 2.3 mit 0,1 % wässriger Phosphorsäure und Acetonitril als Eluenten; linearer Gradient von 10 % Acetonitril bis 90 % Acetonitril.

Die Eichung erfolgt mit unverzweigten Alkan-2-onen (mit 3 bis 16 Kohlenstoffatomen), deren logP-Werte bekannt sind (Bestimmung der logP-Werte anhand der Retentionszeiten durch lineare Interpolation zwischen zwei aufeinanderfolgenden Alkanonen).

15

Die lambda-max-Werte wurden an Hand der UV-Spektren von 200 nm bis 400 nm in den Maxima der chromatographischen Signale ermittelt.

**Anwendungsbeispiele:****Beispiel A****5 Podosphaera-Test (Apfel) / protektiv**

Lösungsmittel:        24,5    Gewichtsteile Aceton  
                             24,5    Gewichtsteile Dimethylacetamid  
Emulgator :                1    Gewichtsteil Alkyl-Aryl-Polyglykoether

10

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

15 Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge besprüht. Nach Antrocknen des Spritzbelages werden die Pflanzen mit einer wässrigen Sporensuspension des Apfelmehltauerregers *Podosphaera leucotricha* inokuliert. Die Pflanzen werden dann im Gewächshaus bei ca. 23°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von ca. 70 % aufgestellt.

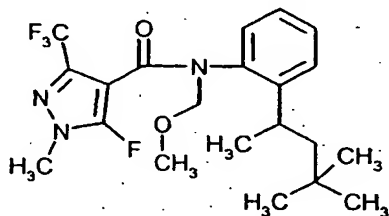
20

10 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0 % ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100 % bedeutet, dass kein Befall beobachtet wird.

Tabelle A

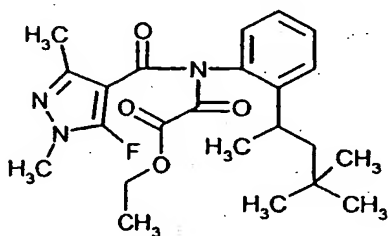
## Podospaera-Test (Apfel) / protektiv

Wirkstoff Erfindungsgemäß	Aufwandmenge an Wirkstoff in g/ha	Wirkungsgrad in %
------------------------------	--------------------------------------	----------------------



100

98



100

97

Beispiel B**Venturia - Test (Apfel) / protektiv**

- 5    Lösungsmittel:        24,5    Gewichtsteile Aceton  
                              24,5    Gewichtsteile Dimethylacetamid  
Emulgator :                1        Gewichtsteil Alkyl-Aryl-Polyglykolether

10    Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

15    Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge besprüht. Nach Antrocknen des Spritzbelages werden die Pflanzen mit einer wässrigen Konidiensuspension des Apfelschorferregers *Venturia inaequalis* inokuliert und verbleiben dann 1 Tag bei ca. 20°C und 100 % relativer Luftfeuchtigkeit in einer Inkubationskabine.

20    Die Pflanzen werden dann im Gewächshaus bei ca. 21°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von ca. 90 % aufgestellt.

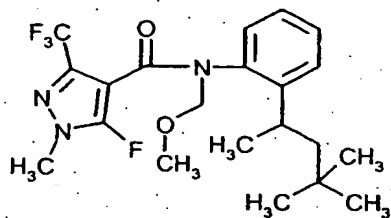
10 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0 % ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100 % bedeutet, dass kein Befall beobachtet wird.



Tabelle B

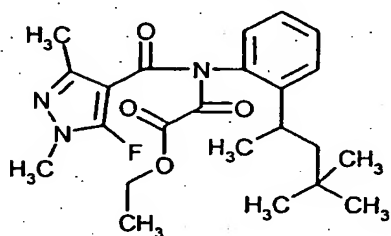
## Venturia - Test (Apfel) / protektiv

Wirkstoff Erfindungsgemäß	Aufwandmenge an Wirkstoff in g/ha	Wirkungsgrad in %
------------------------------	--------------------------------------	----------------------



100

100



100

100

Beispiel C**Botrytis - Test (Bohne) / protektiv**

- 5    Lösungsmittel:        24,5    Gewichtsteile Aceton  
                              24,5    Gewichtsteile Dimethylacetamid  
Emulgator :                1        Gewichtsteil Alkyl-Aryl-Polyglykolether

- 10   Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

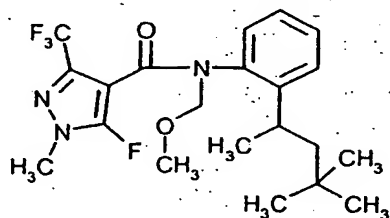
- 15   Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge besprüht. Nach Antrocknen des Spritzbelages werden auf jedes Blatt 2 kleine mit Botrytis cinerea bewachsene Agarstückchen aufgelegt. Die inokulierten Pflanzen werden in einer abgedunkelten Kammer bei ca. 20°C und 100 % relativer Luftfeuchtigkeit aufgestellt.

- 20   2 Tage nach der Inokulation wird die Größe der Befallsflecken auf den Blättern ausgewertet. Dabei bedeutet 0 % ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100 % bedeutet, dass kein Befall beobachtet wird.

Tabelle C

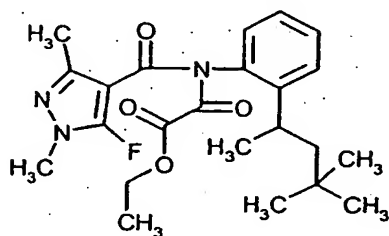
Botrytis - Test (Bohne) / protektiv

Wirkstoff Erfindungsgemäß	Aufwandmenge an Wirkstoff in g/ha	Wirkungsgrad in %
------------------------------	--------------------------------------	----------------------



500

100



500

97

Beispiel D**Puccinia-Test (Weizen) / protektiv**

- 5    Lösungsmittel:            25    Gewichtsteile N,N-Dimethylacetamid  
     Emulgator:             0,6    Gewichtsteile Alkylarylpolyglykolether

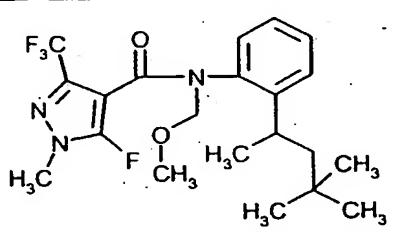
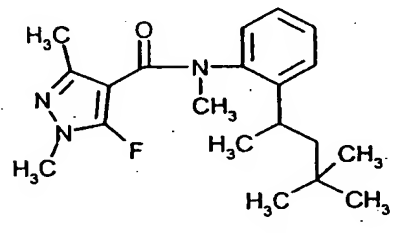
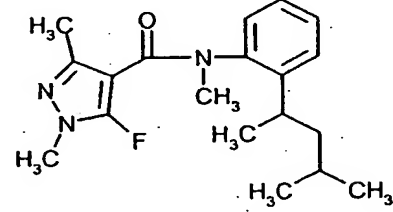
     Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser  
10    auf die gewünschte Konzentration.

     Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge besprüht. Nach Antrocknen des Spritzbelages werden die Pflanzen mit einer Konidiensuspension von *Puccinia recondita* besprüht. Die Pflanzen verbleiben 48 Stunden bei  
15    20°C und 100 % relativer Luftfeuchtigkeit in einer Inkubationskabine.

     Die Pflanzen werden dann in einem Gewächshaus bei einer Temperatur von ca. 20°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von 80 % aufgestellt, um die Entwicklung von Rostpusteln zu begünstigen.  
  
20    10 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0 % ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100 % bedeutet, dass kein Befall beobachtet wird.

Tabelle D

## Puccinia-Test (Weizen) / protektiv

Wirkstoff Erfindungsgemäß	Aufwandmenge an Wirkstoff in g/ha	Wirkungsgrad in %
	500	100
	500	100
	500	100

Beispiel E**Sphaerotheca-Test (Gurke) / protektiv**

- 5    Lösungsmittel:            49    Gewichtsteile N, N-Dimethylformamid  
     Emulgator:              1    Gewichtsteil Alkylarylpolyglykoether

10    Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

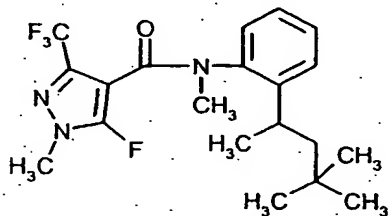
15    Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit bespritzt man junge Gurkenpflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge. 1 Tag nach der Behandlung werden die Pflanzen mit einer Sporensuspension von *Sphaerotheca fuliginea* inokuliert. Anschließend werden die Pflanzen in einem Gewächshaus bei 70 % relativer Luftfeuchtigkeit und einer Temperatur von 23°C aufgestellt.

7 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0 % ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100 % bedeutet, dass kein Befall beobachtet wird.

Tabelle E

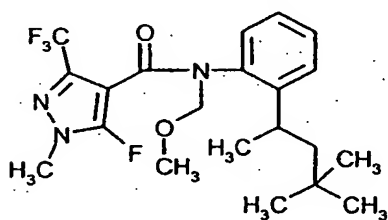
## Sphaerotheca-Test (Gurke) / protektiv

Wirkstoff Erfindungsgemäß	Aufwandmenge an Wirkstoff in g/ha	Wirkungsgrad in %
------------------------------	--------------------------------------	----------------------



750

100

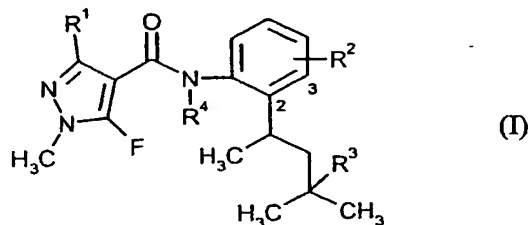


750

100

Patentansprüche

## 1. N-substituierte Pyrazolylcarboxanilide der Formel (I)



5 in welcher

R¹ für Methyl, Trifluormethyl oder Difluormethyl steht,

R² für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Methyl oder Trifluormethyl steht,

a) R³ für Wasserstoff steht,

10

R⁴ für C₁-C₈-Alkyl, C₁-C₆-Alkylsulfinyl, C₁-C₆-Alkylsulfonyl, C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₃-C₈-Cycloalkyl; C₁-C₆-Halogenalkyl, C₁-C₄-Halogenalkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylsulfinyl, C₁-C₄-Halogenalkylsulfonyl, Halogen-C₁-C₄-alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₃-C₈-Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; Formyl, Formyl-C₁-C₃-alkyl, (C₁-C₃-Alkyl)-carbonyl-C₁-C₃-alkyl, (C₁-C₃-Alkoxy)carbonyl-C₁-C₃-alkyl; Halogen-(C₁-C₃-alkyl)carbonyl-C₁-C₃-alkyl, Halogen-(C₁-C₃-alkoxy)carbonyl-C₁-C₃-alkyl mit jeweils 1 bis 13 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; (C₃-C₈-Cycloalkyl)carbonyl; (C₃-C₈-Halogencycloalkyl)carbonyl mit 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; oder -C(=O)C(=O)R⁵, -CONR⁶R⁷ oder -CH₂NR⁸R⁹ steht,

15

20

b) R³ für Halogen, C₁-C₈-Alkyl oder C₁-C₈-Halogenalkyl steht,

25

R⁴ für C₁-C₈-Alkyl, C₁-C₆-Alkylsulfinyl, C₁-C₆-Alkylsulfonyl, C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₃-C₈-Cycloalkyl; C₁-C₆-Halogenalkyl, C₁-C₄-Halogenalkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylsulfinyl, C₁-C₄-Halogenalkylsulfonyl, Halogen-C₁-C₄-alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₃-C₈-Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; Formyl, Formyl-C₁-C₃-alkyl, (C₁-C₃-Alkyl)-carbonyl-C₁-C₃-alkyl, (C₁-C₃-Alkoxy)carbonyl-C₁-C₃-alkyl; Halogen-(C₁-C₃-alkyl)carbonyl-C₁-C₃-alkyl, Halogen-(C₁-C₃-alkoxy)carbonyl-C₁-C₃-alkyl mit jeweils 1 bis 13 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; (C₁-C₈-Alkyl)carbonyl, (C₁-C₈-Alkoxy)carbonyl, (C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkyl)carbonyl, (C₃-C₈-Cycloalkyl)carbonyl; (C₁-C₆-Halogenalkyl)carbonyl, (C₁-C₆-Halogenalkoxy)carbonyl, (Halogen-C₁-C₄-alkoxy-C₁-C₄-alkyl)carbonyl, (C₃-C₈-Halogencycloalkyl)carbonyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor-

30



und/oder Bromatomen; oder  $-C(=O)C(=O)R^5$ ,  $-CONR^6R^7$  oder  $-CH_2NR^8R^9$  steht,

5  $R^5$  für Wasserstoff,  $C_1$ - $C_8$ -Alkyl,  $C_1$ - $C_8$ -Alkoxy,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy- $C_1$ - $C_4$ -alkyl,  $C_3$ - $C_8$ -Cycloalkyl;  $C_1$ - $C_6$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - $C_6$ -Halogenalkoxy, Halogen- $C_1$ - $C_4$ -alkoxy- $C_1$ - $C_4$ -alkyl,  $C_3$ - $C_8$ -Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht,

10  $R^6$  und  $R^7$  unabhängig voneinander jeweils für Wasserstoff,  $C_1$ - $C_8$ -Alkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy- $C_1$ - $C_4$ -alkyl,  $C_3$ - $C_8$ -Cycloalkyl;  $C_1$ - $C_8$ -Halogenalkyl, Halogen- $C_1$ - $C_4$ -alkoxy- $C_1$ - $C_4$ -alkyl,  $C_3$ - $C_8$ -Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen stehen,

15  $R^6$  und  $R^7$  außerdem gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, einen gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen oder  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl substituierten gesättigten Heterocyclus mit 5 bis 8 Ringatomen bilden, wobei der Heterocyclus 1 oder 2 weitere, nicht benachbarte Heteroatome aus der Reihe Sauerstoff, Schwefel oder  $NR^{10}$  enthalten kann,

$R^8$  und  $R^9$  unabhängig voneinander für Wasserstoff,  $C_1$ - $C_8$ -Alkyl,  $C_3$ - $C_8$ -Cycloalkyl;  $C_1$ - $C_8$ -Halogenalkyl,  $C_3$ - $C_8$ -Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen stehen,

20  $R^8$  und  $R^9$  außerdem gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, einen gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen oder  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl substituierten gesättigten Heterocyclus mit 5 bis 8 Ringatomen bilden, wobei der Heterocyclus 1 oder 2 weitere, nicht benachbarte Heteroatome aus der Reihe Sauerstoff, Schwefel oder  $NR^{10}$  enthalten kann,

25  $R^{10}$  für Wasserstoff oder  $C_1$ - $C_6$ -Alkyl steht.

2. N-substituierte Pyrazolylcarboxanilide der Formel (I) gemäß Anspruch 1, in welcher

$R^1$  für Methyl, Trifluormethyl oder Difluormethyl steht,

$R^2$  für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Methyl oder Trifluormethyl steht,

a)  $R^3$  für Wasserstoff steht,

30  $R^4$  für  $C_1$ - $C_6$ -Alkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylsulfinyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylsulfonyl,  $C_1$ - $C_3$ -Alkoxy- $C_1$ - $C_3$ -alkyl,  $C_3$ - $C_6$ -Cycloalkyl;  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylthio,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylsulfinyl,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylsulfonyl, Halogen- $C_1$ - $C_3$ -alkoxy- $C_1$ - $C_3$ -alkyl,  $C_3$ - $C_6$ -Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; Formyl, Formyl- $C_1$ - $C_3$ -alkyl, ( $C_1$ - $C_3$ -Alkyl)-carbonyl- $C_1$ - $C_3$ -alkyl, ( $C_1$ - $C_3$ -Alkoxy)carbonyl- $C_1$ - $C_3$ -alkyl; Halogen- $(C_1$ - $C_3$ -

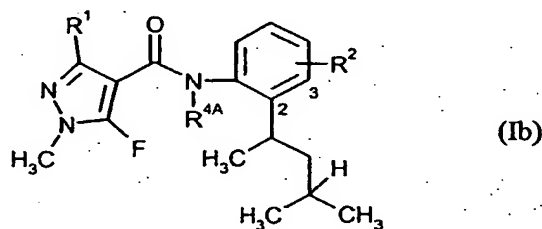
- alkyl)carbonyl-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl, Halogen-(C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkoxy)carbonyl-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl mit jeweils 1 bis 13 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen;  
 (C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl)carbonyl; (C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenycycloalkyl)carbonyl mit 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; oder -C(=O)C(=O)R<sup>5</sup>, -CONR<sup>6</sup>R<sup>7</sup> oder -CH<sub>2</sub>NR<sup>8</sup>R<sup>9</sup> steht,
- 5                   b)   R<sup>3</sup>   für Fluor, Chlor, Brom, Iod, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 13 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht,
- R<sup>4</sup>   für C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfinyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-Alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl; C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkylthio, 10                   C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkylsulfinyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkylsulfonyl, Halogen-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenycycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; Formyl, Formyl-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl, (C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-Alkyl)-carbonyl-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl, (C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-Alkoxy)carbonyl-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl; Halogen-(C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl)carbonyl-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl, Halogen-(C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkoxy)carbonyl-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl mit 15                   jeweils 1 bis 13 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen;  
                       (C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl)carbonyl, (C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkoxy)carbonyl, (C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-Alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl)carbonyl, (C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl)carbonyl; (C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl)carbonyl, (C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy)carbonyl, (Halogen-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl)carbonyl, (C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenycycloalkyl)carbonyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; oder -C(=O)C(=O)R<sup>5</sup>, -CONR<sup>6</sup>R<sup>7</sup> oder -CH<sub>2</sub>NR<sup>8</sup>R<sup>9</sup> 20                   steht,
- R<sup>5</sup>   für Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-Alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl; C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy, Halogen-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenycycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder 25                   Bromatomen steht,
- R<sup>6</sup> und R<sup>7</sup> unabhängig voneinander jeweils für Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-Alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl; C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl, Halogen-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenycycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen 30                   stehen,
- R<sup>6</sup> und R<sup>7</sup> außerdem gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, einen gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Halogen oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl substituierten gesättigten Heterocyclus mit 5 bis 8 Ringatomen bilden, wobei der Heterocyclus 1 oder 2 weitere, nicht benachbarte Heteroatome aus der Reihe Sauerstoff, Schwefel oder NR<sup>10</sup> enthalten kann,

$R^8$  und  $R^9$  unabhängig voneinander für Wasserstoff,  $C_1$ - $C_6$ -Alkyl,  $C_3$ - $C_6$ -Cycloalkyl;  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkyl,  $C_3$ - $C_6$ -Halogenocycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen stehen,

$R^8$  und  $R^9$  außerdem gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, einen gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Halogen oder  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl substituierten gesättigten Heterocyclus mit 5 bis 8 Ringatomen bilden, wobei der Heterocyclus 1 oder 2 weitere, nicht benachbarte Heteroatome aus der Reihe Sauerstoff, Schwefel oder  $NR^{10}$  enthalten kann,

$R^{10}$  für Wasserstoff oder  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl steht.

### 3. N-substituierte Pyrazolylcarboxanilide der Formel (Ib)



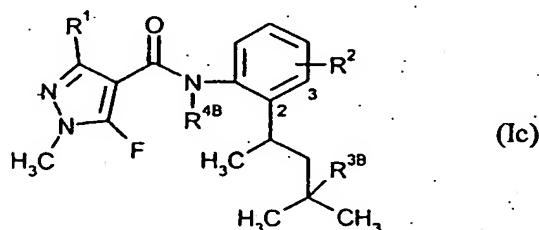
in welcher

$R^{4A}$  für  $C_1$ - $C_8$ -Alkyl,  $C_1$ - $C_6$ -Alkylsulfinyl,  $C_1$ - $C_6$ -Alkylsulfonyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy- $C_1$ - $C_4$ -alkyl,  $C_3$ - $C_8$ -Cycloalkyl;  $C_1$ - $C_6$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylthio,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylsulfinyl,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylsulfonyl, Halogen- $C_1$ - $C_4$ -alkoxy- $C_1$ - $C_4$ -alkyl,  $C_3$ - $C_8$ -Halogenocycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; Formyl, Formyl- $C_1$ - $C_3$ -alkyl, ( $C_1$ - $C_3$ -Alkyl)carbonyl- $C_1$ - $C_3$ -alkyl, ( $C_1$ - $C_3$ -Alkoxy)carbonyl- $C_1$ - $C_3$ -alkyl; Halogen-( $C_1$ - $C_3$ -alkyl)carbonyl- $C_1$ - $C_3$ -alkyl, Halogen-( $C_1$ - $C_3$ -alkoxy)carbonyl- $C_1$ - $C_3$ -alkyl mit jeweils 1 bis 13 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen;

( $C_3$ - $C_8$ -Cycloalkyl)carbonyl; ( $C_3$ - $C_8$ -Halogenocycloalkyl)carbonyl mit 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; oder  $-C(=O)C(=O)R^5$ ,  $-CONR^6R^7$  oder  $-CH_2NR^8R^9$  steht,

und  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^5$ ,  $R^6$ ,  $R^7$ ,  $R^8$  und  $R^9$  die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben.

### 4. N-substituierte Pyrazolylcarboxanilide der Formel (Ic)



in welcher

$R^{3B}$  für Halogen,  $C_1$ - $C_8$ -Alkyl oder  $C_1$ - $C_8$ -Halogenalkyl steht,

$R^{4B}$  für  $C_1$ - $C_8$ -Alkyl,  $C_1$ - $C_6$ -Alkylsulfinyl,  $C_1$ - $C_6$ -Alkylsulfonyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy- $C_1$ - $C_4$ -alkyl,  $C_3$ - $C_8$ -Cycloalkyl;  $C_1$ - $C_6$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylthio,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylsulfinyl,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylsulfonyl, Halogen- $C_1$ - $C_4$ -alkoxy- $C_1$ - $C_4$ -alkyl,  $C_3$ - $C_8$ -Halogenycycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; Formyl, Formyl- $C_1$ - $C_3$ -alkyl, ( $C_1$ - $C_3$ -Alkyl)carbonyl- $C_1$ - $C_3$ -alkyl, ( $C_1$ - $C_3$ -Alkoxy)carbonyl- $C_1$ - $C_3$ -alkyl; Halogen-( $C_1$ - $C_3$ -alkyl)carbonyl- $C_1$ - $C_3$ -alkyl, Halogen-( $C_1$ - $C_3$ -alkoxy)carbonyl- $C_1$ - $C_3$ -alkyl mit jeweils 1 bis 13 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen;

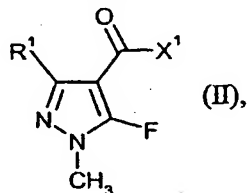
( $C_1$ - $C_8$ -Alkyl)carbonyl, ( $C_1$ - $C_8$ -Alkoxy)carbonyl, ( $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy- $C_1$ - $C_4$ -alkyl)carbonyl, ( $C_3$ - $C_8$ -Cycloalkyl)carbonyl; ( $C_1$ - $C_6$ -Halogenalkyl)carbonyl, ( $C_1$ - $C_6$ -Halogenalkoxy)carbonyl, (Halogen- $C_1$ - $C_4$ -alkoxy- $C_1$ - $C_4$ -alkyl)carbonyl, ( $C_3$ - $C_8$ -Halogenycycloalkyl)carbonyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; oder  $-C(=O)C(=O)R^5$ ,  $-CONR^6R^7$  oder  $-CH_2NR^8R^9$  steht, und  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^5$ ,  $R^6$ ,  $R^7$ ,  $R^8$  und  $R^9$  die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben.

5. N-substituierte Pyrazolylcarboxanilide der Formel (I) gemäß Anspruch 1, in welcher  $R^4$  für Formyl steht.

6. N-substituierte Pyrazolylcarboxanilide der Formel (I) gemäß Anspruch 1, in welcher  $R^4$  für  $-C(=O)C(=O)R^5$  steht und  $R^5$  die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen hat.

7. Verfahren zum Herstellen der Verbindungen der Formel (I) gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass man

a) Carbonsäure-Derivate der Formel (II)



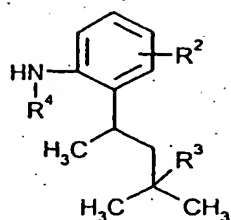
in welcher

$R^1$  die oben angegebenen Bedeutungen hat und

$X^1$  für Halogen oder Hydroxy steht,

mit einem Anilinderivat der Formel (III)

- 45 -

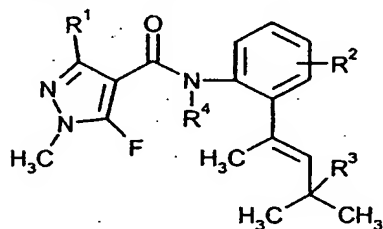


(III)

in welcher  $R^2$ ,  $R^3$  und  $R^4$  die oben angegebenen Bedeutungen haben,  
gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators, gegebenenfalls in Gegenwart eines  
Kondensationsmittels, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und  
gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt,

oder

b) Pyrazolylcarboxanilide der Formel (IV)

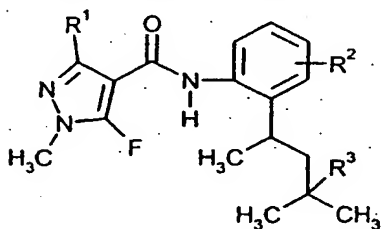


(IV)

in welcher  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  und  $R^4$  die oben angegebenen Bedeutungen haben,  
gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels und gegebenenfalls in  
Gegenwart eines Katalysators hydriert,

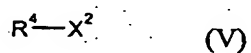
oder

c) Pyrazolylcarboxanilide der Formel (Ia)



(Ia)

in welcher  $R^1$ ,  $R^2$  und  $R^3$  die oben angegebenen Bedeutungen haben  
mit Halogeniden der Formel (V)

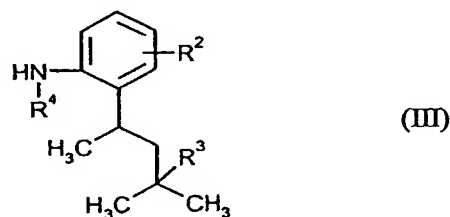


in welcher

 $R^4$  die oben angegebenen Bedeutungen hat und $X^2$  für Chlor, Brom oder Iod steht,

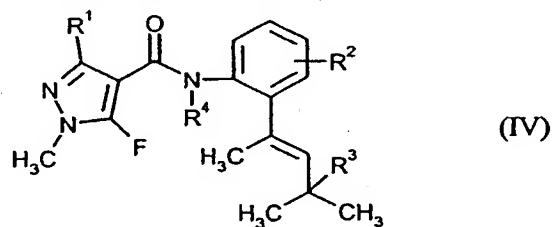
in Gegenwart einer Base und in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt.

8. Mittel zum Bekämpfen unerwünschter Mikroorganismen, gekennzeichnet durch einen Gehalt an mindestens einem N-substituiertes Pyrazolylcarboxanilid der Formel (I) gemäß Anspruch 1 neben Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Stoffen.
- 5 9. Verwendung von N-substituierte Pyrazolylcarboxanilide der Formel (I) gemäß Anspruch 1 zum Bekämpfen unerwünschter Mikroorganismen.
10. Verfahren zum Bekämpfen unerwünschter Mikroorganismen, dadurch gekennzeichnet, dass man N-substituierte Pyrazolylcarboxanilide der Formel (I) gemäß Anspruch 1 auf die  
10 Mikroorganismen und/oder deren Lebensraum ausbringt.
11. Verfahren zum Herstellen von Mitteln zum Bekämpfen unerwünschter Mikroorganismen, dadurch gekennzeichnet, dass man N-substituierte Pyrazolylcarboxanilide der Formel (I) gemäß Anspruch 1 mit Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Stoffen vermischt.
- 15 12. Anilinderivate der Formel (III)



in welcher  $R^2$ ,  $R^3$  und  $R^4$  die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben.

- 20 13. Pyrazolylcarboxanilide der Formel (IV)



in welcher  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  und  $R^4$  die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben.

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES  
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
12. Mai 2005 (12.05.2005)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
**WO 2005/042480 A3**

(51) Internationale Patentklassifikation<sup>7</sup>: C07D 231/16, A01N 43/56

(74) Gemeinsamer Vertreter: BAYER CROPSCIENCE AKTIENGESELLSCHAFT; Law and Patents, Patents and Licensing, 51368 Leverkusen (DE).

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2004/011396

(22) Internationales Anmeldedatum:  
12. Oktober 2004 (12.10.2004)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:  
10349497.9 23. Oktober 2003 (23.10.2003) DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): BAYER CROPSCIENCE AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; Alfred-Nobel-Str. 50, 40789 Monheim (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): DUNKEL, Ralf [DE/DE]; Krischer Str. 22, 40789 Monheim (DE). ELBE, Hans-Ludwig [DE/DE]; Dasnöckel 59, 42329 Wuppertal (DE). GREUL, Jörg, Nico [DE/DE]; Am Sandberg 30 a, 42799 Leichlingen (DE). HARTMANN, Benoit [FR/DE]; Färberstr. 1, 40764 Langenfeld (DE). WACHENDORFF-NEUMANN, Ulrike [DE/DE]; Oberer Markweg 85, 56566 Neuwied (DE). DAHMEN, Peter [DE/DE]; Altebrückerstr. 61, 41470 Neuss (DE). KUCK, Karl-Heinz [DE/DE]; Pastor-Löh-Str. 30a, 40764 Langenfeld (DE).

(81) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare nationale Schutzrechtsart): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(84) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare regionale Schutzrechtsart): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Veröffentlicht:

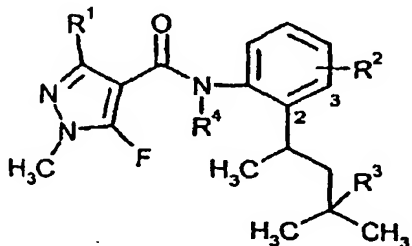
— mit internationalem Recherchenbericht

(88) Veröffentlichungsdatum des internationalen Recherchenberichts: 21. Juli 2005

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

(54) Title: N-SUBSTITUTED PYRAZOLYL CARBOXANILIDES

(54) Bezeichnung: N-SUBSTITUIERTE PYRAZOLYLCARBOXANILIDE



(I)

(57) Abstract: The invention relates to novel N-substituted pyrazolyl carboxanilides of formula (I), in which R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup> and R<sup>4</sup> are defined as cited in the description, to several methods for producing said substances, to their use for controlling undesirable micro-organisms and to novel intermediate products and the production thereof.

(57) Zusammenfassung: Neue N-substituierte Pyrazolylcarboxanilide der Formel (I), in welcher R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup> und R<sup>4</sup> die in der Beschreibung angegebenen Be-

deutungen haben, mehrere Verfahren zum Herstellen dieser Stoffe und deren Verwendung zum Bekämpfen von unerwünschten Mikroorganismen, sowie neue Zwischenprodukte und deren Herstellung.

WO 2005/042480 A3

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Inte

Application No

PCT/EP2004/011396

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 C07D231/16 A01N43/56

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 C07D

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, BEILSTEIN Data, WPI Data, CHEM ABS Data

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
E	WO 2004/103975 A (BAYER CROPSCIENCE AKTIENGESELLSCHAFT; DUNKEL, RALF; ELBE, HANS-LUDWIG;) 2 December 2004 (2004-12-02) Verfahren (f), Seite 26; Verbindungen (III) Seite 3.	12,13
Y	EP 0 545 099 A (BASF AKTIENGESELLSCHAFT) 9 June 1993 (1993-06-09) cited in the application the whole document	1-13
Y	WO 02/059086 A (SYNGENTA PARTICIPATIONS AG; WALTER, HARALD; TRAH, STEPHAN) 1 August 2002 (2002-08-01) cited in the application the whole document	1-13

☐ Further documents are listed in the continuation of box C.☒ Patent family members are listed in annex.

## \* Special categories of cited documents :

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

25 February 2005

Date of mailing of the international search report

21.04.05

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
 NL - 2280 HV Rijswijk  
 Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
 Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Von Daacke, A

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

EP04/11396

## Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 1 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☒ Claims Nos.:  
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:  
  
Although claims 9 and 10 relate in part to a method for treatment of the human or animal body, a search was carried out and was based on the stated effects of the compound or composition.
2. ☐ Claims Nos.:  
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
3. ☐ Claims Nos.:  
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

## Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 2 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

**See the supplemental sheet**

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☐ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
4. ☒ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

**1-13 partly :**

Remark on Protest

- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.  
☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

The International Searching Authority has determined that this international application contains multiple (groups of) inventions, namely:

1. Claims 1-13 (in part)

Compounds of formula (I), R1 meaning methyl.

2. Claims 1-13 (in part)

Compounds of formula (I), R1 meaning difluoromethyl.

3. Claims 1-13 (in parts)

Compounds of formula (I), R1 meaning trifluoromethyl and R3 meaning halogen, alkyl or alkyl halide.

4. Claims 1-13 (in part)

Compounds of formula (I), R1 meaning trifluoromethyl, R3 meaning hydrogen and R4 optionally substituted alkyl.

5. Claims 1-13 (in part)

Compounds of formula (I), R1 meaning trifluoromethyl, R3 meaning hydrogen and R4 an optionally oxidized thioether.

6. Claims 1-13 (in part)

Compounds of formula (I), R1 meaning trifluoromethyl, R3 meaning hydrogen and R4 formyl.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## 7. Claims 1-13 (in part)

Compounds of formula (I), R1 meaning trifluoromethyl, R3 meaning hydrogen and R4 ester or amide (heteroatom-bound acyl).

## 8. Claims 1-13 (in part)

Compounds of formula (I), R1 meaning trifluoromethyl, R3 meaning hydrogen and R4 optionally substituted cycloalkylcarbonyl.

## 9. Claims 1-13 (in part)

Compounds of formula (I), R1 meaning trifluoromethyl, R3 meaning hydrogen and R4 a C(=O)-C(=O)-R5 group.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No  
PCT/EP2004/011396

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO 2004103975	A	02-12-2004	DE 10325439 A1 WO 2004103975 A1	09-12-2004 02-12-2004
EP 0545099	A	09-06-1993	AT 149487 T AU 656243 B2 AU 2855492 A CA 2081935 A1 CZ 9203448 A3 CZ 289478 B6 DE 59208113 D1 DK 545099 T3 EP 0545099 A2 ES 2098421 T3 GR 3023336 T3 HU 62861 A2 IL 103614 A JP 3202079 B2 JP 5221994 A JP 2001253802 A JP 2001316210 A KR 267518 B1 NZ 245194 A PL 296677 A1 SK 344892 A3 US 5480897 A US 5556988 A US 5589493 A US 5330995 A ZA 9208977 A	15-03-1997 27-01-1995 27-05-1993 23-05-1993 13-10-1993 16-01-2002 10-04-1997 24-03-1997 09-06-1993 01-05-1997 29-08-1997 28-06-1993 24-09-1998 27-08-2001 31-08-1993 18-09-2001 13-11-2001 16-10-2000 27-02-1996 18-10-1993 08-03-1995 02-01-1996 17-09-1996 31-12-1996 19-07-1994 19-05-1994
WO 02059086	A	01-08-2002	BR 0206678 A CA 2433819 A1 CN 1498208 A CZ 20032018 A3 WO 02059086 A1 EP 1355879 A1 HU 0302581 A2 JP 2004519464 T MX PA03006472 A PL 363324 A1 US 2004138265 A1 ZA 200305102 A	10-02-2004 01-08-2002 19-05-2004 15-10-2003 01-08-2002 29-10-2003 28-11-2003 02-07-2004 24-05-2004 15-11-2004 15-07-2004 25-08-2004

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Interni des Aktenzeichen  
PCT/EP2004/011396

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES  
IPK 7 C07D231/16 A01N43/56

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 C07D

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, BEILSTEIN Data, WPI Data, CHEM ABS Data

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
E	WO 2004/103975 A (BAYER CROPSCIENCE AKTIENGESELLSCHAFT; DUNKEL, RALF; ELBE, HANS-LUDWIG;) 2. Dezember 2004 (2004-12-02) Verfahren (f), Seite 26; Verbindungen (III) Seite 3.	12,13
Y	EP 0 545 099 A (BASF AKTIENGESELLSCHAFT) 9. Juni 1993 (1993-06-09) in der Anmeldung erwähnt das ganze Dokument	1-13
Y	WO 02/059086 A (SYNGENTA PARTICIPATIONS AG; WALTER, HARALD; TRAH, STEPHAN) 1. August 2002 (2002-08-01) in der Anmeldung erwähnt das ganze Dokument	1-13

☐ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

25. Februar 2005

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

21.04.05

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Von Daacke, A

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen  
PCT/EP2004/011396

### Feld II Bemerkungen zu den Ansprüchen, die sich als nicht recherchierbar erwiesen haben (Fortsetzung von Punkt 2 auf Blatt 1)

Gemäß Artikel 17(2)a) wurde aus folgenden Gründen für bestimmte Ansprüche kein Recherchenbericht erstellt:

1. ☒ Ansprüche Nr.  
weil sie sich auf Gegenstände beziehen, zu deren Recherche die Behörde nicht verpflichtet ist, nämlich  
**Obwohl die Ansprüche 9 und 10 sich teilweise auf ein Verfahren zur Behandlung des menschlichen/tierischen Körpers beziehen, wurde die Recherche durchgeführt und gründete sich auf die angeführten Wirkungen der Verbindung/Zusammensetzung.**
2. ☐ Ansprüche Nr.  
weil sie sich auf Teile der internationalen Anmeldung beziehen, die den vorgeschriebenen Anforderungen so wenig entsprechen, daß eine sinnvolle internationale Recherche nicht durchgeführt werden kann, nämlich
3. ☐ Ansprüche Nr.  
weil es sich dabei um abhängige Ansprüche handelt, die nicht entsprechend Satz 2 und 3 der Regel 6.4 a) abgefaßt sind.

### Feld III Bemerkungen bei mangelnder Einheitlichkeit der Erfindung (Fortsetzung von Punkt 3 auf Blatt 1)

Die internationale Recherchenbehörde hat festgestellt, daß diese internationale Anmeldung mehrere Erfindungen enthält:

**siehe Zusatzblatt**

1. ☐ Da der Anmelder alle erforderlichen zusätzlichen Recherchegebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht auf alle recherchierbaren Ansprüche.
2. ☐ Da für alle recherchierbaren Ansprüche die Recherche ohne einen Arbeitsaufwand durchgeführt werden konnte, der eine zusätzliche Recherchegebühr gerechtfertigt hätte, hat die Behörde nicht zur Zahlung einer solchen Gebühr aufgefordert.
3. ☐ Da der Anmelder nur einige der erforderlichen zusätzlichen Recherchegebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht nur auf die Ansprüche, für die Gebühren entrichtet worden sind, nämlich auf die Ansprüche Nr.
4. ☒ Der Anmelder hat die erforderlichen zusätzlichen Recherchegebühren nicht rechtzeitig entrichtet. Der internationale Recherchenbericht beschränkt sich daher auf die in den Ansprüchen zuerst erwähnte Erfindung; diese ist in folgenden Ansprüchen erfaßt:  
**1-13 (teilweise)**

Bemerkungen hinsichtlich eines Widerspruchs

- ☐ Die zusätzlichen Gebühren wurden vom Anmelder unter Widerspruch gezahlt.
- ☐ Die Zahlung zusätzlicher Recherchegebühren erfolgte ohne Widerspruch.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## WEITERE ANGABEN

PCT/ISA/ 210

Die internationale Recherchenbehörde hat festgestellt, dass diese internationale Anmeldung mehrere (Gruppen von) Erfindungen enthält, nämlich:

## 1. Ansprüche: 1-13 (teilweise)

Verbindungen der Formel (I), worin R1 Methyl bedeutet.

---

## 2. Ansprüche: 1-13 (teilweise)

Verbindungen der Formel (I), worin R1 Difluormethyl bedeutet.

---

## 3. Ansprüche: 1-13 (teilweise)

Verbindungen der Formel (I), worin R1 Trifluormethyl und R3 Halogen, Alkyl oder Halogenalkyl bedeutet.

---

## 4. Ansprüche: 1-13 (teilweise)

Verbindungen der Formel (I), worin R1 Trifluormethyl, R3 Wasserstoff und R4 ggf. substituiertes Alkyl bedeutet.

---

## 5. Ansprüche: 1-13 (teilweise)

Verbindungen der Formel (I), worin R1 Trifluormethyl, R3 Wasserstoff und R4 ein ggf. oxidierten Thioether ausbildet.

---

## 6. Ansprüche: 1-13 (teilweise)

Verbindungen der Formel (I), worin R1 Trifluormethyl, R3 Wasserstoff und R4 Formyl bedeutet.

---

## 7. Ansprüche: 1-13 (teilweise)

Verbindungen der Formel (I), worin R1 Trifluormethyl, R3 Wasserstoff und R4 Ester oder Amid bedeutet (Heteroatom verknüpftes Acyl).

---

## 8. Ansprüche: 1-13 (teilweise)

Verbindungen der Formel (I), worin R1 Trifluormethyl, R3 Wasserstoff und R4 ggf. substituiertes Cycloalkylcarbonyl bedeutet.

---

## 9. Ansprüche: 1-13 (teilweise)

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



WEITERE ANGABEN

PCT/ISA/ 210

Verbindungen der Formel (I), worin R1 Trifluormethyl, R3  
Wasserstoff und R4 einen Rest  $C(=O)-C(=O)-R5$  bedeutet.

---

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Intern des Aktenzeichen  
PCT/EP2004/011396

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
WO 2004103975 A	02-12-2004	DE 10325439 A1 WO 2004103975 A1	09-12-2004 02-12-2004
EP 0545099 A	09-06-1993	AT 149487 T AU 656243 B2 AU 2855492 A CA 2081935 A1 CZ 9203448 A3 CZ 289478 B6 DE 59208113 D1 DK 545099 T3 EP 0545099 A2 ES 2098421 T3 GR 3023336 T3 HU 62861 A2 IL 103614 A JP 3202079 B2 JP 5221994 A JP 2001253802 A JP 2001316210 A KR 267518 B1 NZ 245194 A PL 296677 A1 SK 344892 A3 US 5480897 A US 5556988 A US 5589493 A US 5330995 A ZA 9208977 A	15-03-1997 27-01-1995 27-05-1993 23-05-1993 13-10-1993 16-01-2002 10-04-1997 24-03-1997 09-06-1993 01-05-1997 29-08-1997 28-06-1993 24-09-1998 27-08-2001 31-08-1993 18-09-2001 13-11-2001 16-10-2000 27-02-1996 18-10-1993 08-03-1995 02-01-1996 17-09-1996 31-12-1996 19-07-1994 19-05-1994
WO 02059086 A	01-08-2002	BR 0206678 A CA 2433819 A1 CN 1498208 A CZ 20032018 A3 WO 02059086 A1 EP 1355879 A1 HU 0302581 A2 JP 2004519464 T MX PA03006472 A PL 363324 A1 US 2004138265 A1 ZA 200305102 A	10-02-2004 01-08-2002 19-05-2004 15-10-2003 01-08-2002 29-10-2003 28-11-2003 02-07-2004 24-05-2004 15-11-2004 15-07-2004 25-08-2004

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**